UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

OPTIMISATION DES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES D'UN COMPOSITE CARBONE ÉPOXY FABRIQUÉ PAR LE PROCÉDÉ RFI

MAHAMAT MAMADOU LAMINE KOANDA
DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE MÉCANIQUE)
JUIN 2012

© Mahamat Mamadou Lamine Koanda, 2012.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

OPTIMISATION DES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES D'UN COMPOSITE CARBONE ÉPOXY FABRIQUÉ PAR LE PROCÉDÉ RFI

présenté par : KOANDA Mahamat Mamadou Lamine
en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées
a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. SHIRAZI-ADL Aboulfazl, Ph.D., président
M. BOUKHILI Rachid, Ph.D., membre et directeur de recherche
M. ATARSIA Abdelatif, Ph.D., membre

Á ma famille : En reconnaissance de tous les sacrifices consentis par tous pour me hisser à cette étape de ma vie.

Mon père

Ma mère

Mes soeurs

Remerciements

Avant tout développement de ce mémoire, il me paraît opportun de débuter par l'expression de ma gratitude envers ceux qui m'ont beaucoup appris, soutenus au cours de cette immersion à la recherche, mais également envers tous ceux qui ont eu la gentillesse de faire de ces instants des moments profitables et agréables aussi bien sur le plan professionnel qu'humains.

Á mon professeur et directeur de recherche Rachid BOUKHILI professeur à l'École Polytechnique de Montréal. Par ces lignes, je te témoigne ma profonde gratitude pour m'avoir accueilli dans ton groupe de recherche, m'avoir guidé, conseillé et soutenu financièrement.Tes compétences scientifiques et tes idées pertinentes m'ont permis de mener à bien ce projet.

Á mon collègue de recherche Aymen MAROUENE étudiant en PHD à l'École Polytechnique de Montréal , pour ton aide précieuse tout au long de la maîtrise notamment l'utilisation du C-scan et découpe des échantillons.

Au Président du jury Aboulfazl SHIRAZI-ADL professeur à l'École Polytechnique de Montréal, merci pour cet honneur.
Á l'examinateur externe Abdelatif ATARSIA spécialiste des matériaux composites, directeur à MAPAL Composite merci pour cet honneur.

Au personnel du département génie mécanique, section design et fabrication de l'école Polytechnique de Montréal, à mes collègues SUPAERO à Montréal, mes collègues de Polytechnique Montréal, et bien d'autres, je vous remercie d'avoir fait de ce séjour l'instant d'un beau rêve

Enfin à ma famille qui m'a toujours supporté, ce mémoire est notre accomplissement

Résumé

Le procédé d'infusion de film de résine (RFI) est un procédé de fabrication de matériaux composites. Surtout connu pour le peu d'investissement qu'il requiert, le procédé RFI est de plus en plus utilisé dans le milieu aéronautique. Cependant, nombre d'aspects de ce procédé sont très peu maîtrisés. En général, la qualité physique de la pièce finale dépend du procédé utilisé. Pour le cas du RFI, le contrôle des caractéristiques physiques que sont les épaisseurs, le taux de fibres et le taux de vide restent de gros enjeux. Ce mémoire présente l'optimisation des propriétés physiques d'un composite carbone époxy fabriqué par procédés RFI. Les normes $ASTMD3171$, et $ASTMD792$ ont été utilisées pour la mesure de taux de vide, et de fibres

Nous avons tout d'abord introduit des modes de drapage dans le procédé RFI et évalué leurs impacts sur les propriétés physiques du produit fini. Les résultats des expériences montrent que le mode primaire A, avec les films de résine en bas permet d'avoir des pièces de bien meilleure qualité, avec des épaisseurs, des taux de fibres et vide contrôlés. Le mode primaire B (films dans le plan symétrique du laminé) donne des résultats identiques au mode A à l'exception des épaisseurs qui sont plus irrégulières et de faibles taux de fibres V_f. Le mode primaire C (films symétriques dans le laminé) crée localement des taux de vide inacceptable. Le mode primaire D (films de résine en surface du laminé) présente des résultats bien meilleurs que A, mais à l'exception des épaisseurs qui sont plus irrégulières par rapport à A. L'ajout de gaps et overlaps de film de résine au-delà de $2.54cm$ $(1'')$ devient nuisible aux propriétés physiques, et est déconseillé.Une observation au C-scan permet d'attribuer la majorité des défauts aux overlaps de résine.

Enfin, nous avons analysé le cycle de cuisson à la lumière de modèles de porosités thermodynamiques. Il apparaît qu'au niveau des porosités, le phénomène de diffusion est essentiel dans ce procédé. Un meilleur conditionnement du film de résine produit par Cytec pourrait être efficace. Un design optimal avec brisure de cycle et retard de pression nous a permis d'avoir un cycle de cuisson optimal pour le procédé RFI.

Abstract

The RFI (Resin Film Infusion) process is a composite materials manufacturing process. Especially known for the small investment it requires, RFI processes are more and more widely used in the aeronautical industry. However a number of aspects of this process are still not well controlled. The quality of the final part depends on which process is used. In the case of RFI, controlling physical characteristics such as thickness, fiber volume fraction or void content remains a major challenge. This dissertation deals with the optimization of the physical properties of a carbon composite manufactured with RFI processes. The ASTMD3171 and ASTMD792 standards were used to measure the void content and fiber volume fraction.

First, we introduced different layup sequences in the RFI process and evaluate their impact on the physical properties of the final product. The experiments show the primary mode A, with the resin film at the bottom, resulting in much better quality with controlled fiber volume fraction and void content. Mode B (film in the symmetrical plane) yields results identical to mode A except more irregular thicknesses. Mode C (symmetrical film in the laminate) produces locally unacceptable void contents. Mode D (resin film on the top of the laminate) yields much better results than mode A with the exception of the more irregular thicknesses. Making gaps and overlaps with the resin film has negative effects beyond $2.54cm$ (one inch) and should be avoided.Several C-scan observations of the manufactured samples showed a large accumulation of porosity in the resin rich areas, as well as surface defects

Ultimately we analyzed the cure cycle in light of the thermodynamic porosity models. It is evident that the diffusion phenomenon is essential in this process. Therefore a better conditioning of the resin film made by Cytec is required. An optimal design with a cycle stop and pressure lag yields the optimal cure cycle for the RFI process.

Table des matières

Dédicace iii

Remerciements iv

Résumé v

Abstract vi

Table des matières vii

Liste des tableaux x

Liste des figures xi

Liste des annexes xiv

Liste des sigles et abréviations xv

INTRODUCTION 1

Chapitre 1 REVUE DE LITTÉRATURE 5
1.1 Description du matériau étudié 5
1.1.1 Généralité sur les composites 5
1.1.2 la matrice époxy 7
1.1.3 Le renfort carbone 7
1.2 Présentations des procédés de fabrication en aéronautiques 10
1.2.1 Généralités 10
1.2.2 Technologie préimprégnée 11
1.2.2.1 Découpe et Drapage 11
1.2.2.2 Cuisson par Autoclave 12
1.2.3 Drapage par placement automatique des fibres :AFP 14
1.2.4 Liquide composite molding 16
1.2.4.1 Liquide composite molding : injection RTM 16
1.2.4.2 Liquide Composite molding : l'infusion RFI 17
1.2.4.3 Liquide composite molding : l'infusion LRI 18
1.2.5 Simulation et enjeux économiques 18
1.3 Écoulement de la résine dans les procédés 19
1.3.1 Écoulement et conservation de la masse en générale 20

1.3.2 Écoulement et conservation de la masse en milieu poreux 21
1.3.3 Mouvement de la résine dans les canaux libres du milieu poreux (échelle mésoscopique) 22
1.3.4 Perméabilité du milieu et échelle macroscopique de l'écoulement . . 23
1.3.5 Paramètres influençant le mouvement de la résine 26
1.3.5.1 Viscosité de la résine 26
1.3.5.2 Cinétique de cuisson : modèle et mesures 28
1.3.5.3 Contrainte dans les fibres 32
1.3.5.4 Cycle de cuisson : 33
1.4 Porosités au cours des processus de fabrication 34
1.4.1 Causes possibles de la formation de porosités 35
1.4.1.1 Causes mécaniques 35
1.4.1.2 Causes thermodynamiques 38
1.4.2 Influence des porosités sur les propriétés mécaniques du composite . 43
1.4.3 États de l'art sur l'optimisation des porosités par le cycle 44

Chapitre 2 PROCEDURE EXPERIMENTALE 46
2.1 Matériaux utilisés 46
2.2 Procédure de fabrication 47
2.2.1 Calculs préliminaires théoriques basés sur les conditions générales de fabrication 47
2.2.2 Étapes de la fabrication des panneaux 48
2.2.2.1 Découpe et pesée des fibres et du film de la résine 48
2.2.2.2 Drapage 49
2.2.2.3 Ensachage 51
2.2.2.4 Cuisson dans l'autoclave 51
2.2.2.5 Démoulage et découpes des bords 52
2.2.3 Propriétés théoriques équivalentes 53
2.3 Caractérisation physique 54
2.3.1 Mesure de densité 54
2.3.2 Principe de digestion : mesure de taux de vide/fibres 55
2.3.2.1 Mesure du taux de fibres V_f et taux de vide 56
2.3.2.2 Mesure du taux de vide ϵ 57
2.3.3 Précisions et sensibilité des mesures de V_f et ϵ 57
2.3.3.1 Sensibilité pour ρ_c 57
2.3.3.2 Sensibilité pour W_f 58
2.3.3.3 Sensibilité pour ρ_{th} 58
2.3.3.4 Sensibilité pour V_f 58
2.3.3.5 Sensibilité pour ϵ 58

2.3.3.6 Sensibilité pour les épaisseurs 58
2.3.3.7 Précisions des instruments de mesure 58
2.3.3.8 Tableau récapitulatif des précisions de mesure 59
2.3.4 Observation Qualitative au C-scan 59
2.3.4.1 Généralité sur le C-scan 59
2.3.4.2 Principe de fonctionnement du C-scan 60

Chapitre 3 RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET MODÉLISATIONS 62
3.1 Mesures, et Approximations statistiques 62
3.1.1 Généralité 62
3.1.2 Application à nos mesures 63
3.2 Optimisation du drapage 65
3.2.1 Drapage Mode primaire 65
3.2.1.1 Analyse de l'évolution des épaisseurs 65
3.2.1.2 Analyse de l'évolution du taux de fibres 65
3.2.1.3 Analyse de l'évolution du taux de vide 65
3.2.2 Drapage secondaire 71
3.2.2.1 Analyse de l'évolution des épaisseurs 72
3.2.2.2 Analyse de l'évolution du taux de fibres 72
3.2.2.3 Analyse de l'évolution du taux de vide 72
3.3 Observation qualitative des plaques au C-scan 76
3.4 Modèles et Simulations 83
3.4.1 Approximation :Temps caractéristiques du système 84
3.4.2 Simulations : Validation des modèles de η ,α 85
3.4.3 Résultats numériques et discutions 86
3.4.3.1 Diagnostique du cycle nominal proposé par Cytec 86
3.4.3.2 Effet de brisure en palier du cycle en température 89
3.4.3.3 Effet d'un retard de pression 90
3.4.3.4 Explications des effets combinés de température et de la pression 92
3.4.3.5 Processus de design et optimisation de cycle de cuisson . 92

CONCLUSION 94

REFERENCES 97

ANNEXES 104

Liste des tableaux

TABLEAU 1.1 Propriétés et applications typiques des résines thermodurcissables les plus répandues 6
TABLEAU 1.2 Caractéristiques Principales de la résine époxy 8
TABLEAU 1.3 Caractéristiques Principales des fibres de carbone 9
TABLEAU 1.4 Caractéristiques principales de l'autoclave 14
TABLEAU 1.5 Caractéristiques principales du procédé AFP 16
TABLEAU 1.6 Caractéristiques principales de l'injection RTM 17
TABLEAU 1.7 Caractéristiques principales des procédés d'infusion 19
TABLEAU 1.8 Paramètres du modèle semi-empirique de viscosité 28
TABLEAU 2.1 Propriétés du tissu NCF de carbone 46
TABLEAU 2.2 Propriétés de la résine époxy 46
TABLEAU 2.3 Conditions de fabrication 47
TABLEAU 2.4 Calculs préliminaires théoriques selon les conditions générales de fabrication 48
TABLEAU 2.5 Rôles des composants d'ensachage dans le processus de cuisson . . . 52
TABLEAU 2.6 Exemple de mesures lors d'une fabrication 53
TABLEAU 2.7 Propriétés physiques équivalentes 53
TABLEAU 2.8 Limites des mesures 59
TABLEAU 3.1 Résultats d'isothermes DSC 83
TABLEAU 3.2 résultats d'isothermes : Mesures rhéomètrie 84
TABLEAU 3.3 Cycle de cuisson optimal mode primaire A 93

Liste des figures

Figure 1.1	Groupement Epoxy dans la résine	7
Figure 1.2	(a) mat de fibre longue. (b) mat de fibre courte	8
Figure 1.3	différents tissus de fibres	10
Figure 1.4	tissu préimprégné de carbone	11
Figure 1.5	Enceinte d'autoclave pour la cuisson	12
Figure 1.6	Salle Blanche pour la découpe des fibres	12
Figure 1.7	Système expert de cuisson	14
Figure 1.8	Tête du robot de placement de fibres	15
Figure 1.9	Principe du placement de fibres	15
Figure 1.10	Étapes d'exécution du procédé RTM	17
Figure 1.11	Mode opératoire du procédé RFI	18
Figure 1.12	Mode opératoire du procédé LRI	18
Figure 1.13	Vue d'ensemble d'un milieu poreux	22
Figure 1.14	Principes des DSC à flux de chaleur et à compensation de puissance	32
Figure 1.15	Exemple de cycle standard de cuisson de l'époxy EPON 862/W	34
Figure 1.16	Classification des porosités	35
Figure 1.17	(a)Macros vides causés par la capillarité (b) Micros vides causés par la viscosité	36
Figure 1.18	Taux de vide ϵ en fonction C_a^* en procédé RTM	37
Figure 1.19	Enthalpie et formation de bulles d'air	39
Figure 1.20	Modèle d'une porosité dans la résine	42
Figure 1.21	Validation de la loi de Ghiorse :cas de la traction	44
Figure 1.22	Validation de la loi de Ghiorse :cas de l'ILLS	44
Figure 1.23	plage optimale d'application de la pression hydrostatique	45
Figure 1.24	Pression de vide et évolution de porosités	45
Figure 2.1	Courbe de viscosité indiquée dans la fiche technique de Cyctec	47
Figure 2.2	Mode opératoire de la fabrication : découpe de fibres/ films de résine	49
Figure 2.3	drapage : Modes primaires de drapage A et B	50
Figure 2.4	drapage : Modes primaires de drapage C et D	50
Figure 2.5	Modes secondaires : position de gaps et d'overlaps dans le laminé	51
Figure 2.6	Composants d'ensachage	51
Figure 2.7	Cycle de cuisson proposé par Cytec	52
Figure 2.8	Échantillonnage des mesures	54
Figure 2.9	mesure de la masse volumique du composite	55
Figure 2.10	Procédure de digestion $ASTMD3171$	56
Figure 2.11	Procédure de digestion $ASTMD3171$	56

FIGURE 2.12 Procédure de digestion $ASTMD3171$ 56
FIGURE 2.13 Balance METTLER $AE240$ 59
FIGURE 2.14 C-scan 60
FIGURE 2.15 Principe de fonctionnement d'un C-scan 60
FIGURE 2.16 Exemple de résultat d'un balayage par C-scan 61
FIGURE 3.1 Approximation de V_f, H avec erreurs d'approximations e 64
FIGURE 3.2 Approximation globale de vide ϵ avec erreurs d'approximations e, . 64
FIGURE 3.3 champ des épaisseurs en mm : Modes primaires de fabrication A et B 66
FIGURE 3.4 champ des épaisseurs en mm : Modes primaires de fabrication C et D 66
FIGURE 3.5 Dispersion des épaisseurs : modes primaires de fabrication 67
FIGURE 3.6 Écart moyen des épaisseurs :modes primaires de fabrication 67
FIGURE 3.7 champ de V_f : Modes primaires de fabrication A et B 68
FIGURE 3.8 champ de V_f : Modes primaires de fabrication C et D 68
FIGURE 3.9 Maximum des V_f 69
FIGURE 3.10 Moyenne V_f :modes secondaires de fabrication 69
FIGURE 3.11 champ de vide : Modes primaires de fabrication A et B 70
FIGURE 3.12 champ de vide : Modes primaires de fabrication C et D 70
FIGURE 3.13 Taux de vide moyen :modes primaires de fabrication 71
FIGURE 3.14 Taux de vide maximum :modes primaires de fabrication 71
FIGURE 3.15 Champ des épaisseurs : mode de fabrication secondaire AA en mm . 72
FIGURE 3.16 Champ des épaisseurs : mode de fabrication AB en mm 73
FIGURE 3.17 Dispersion des épaisseurs : modes secondaires de fabrication 73
FIGURE 3.18 Écart moyen des épaisseurs :modes secondaires de fabrication . . . 74
FIGURE 3.19 champ de V_f : Modes secondaires de fabrication AA et AB 75
FIGURE 3.20 champ de vide : Modes secondaires de fabrication AA et AB 75
FIGURE 3.21 Taux de vide moyen :modes secondaires de fabrication 76
FIGURE 3.22 Taux de vide moyen :modes secondaires de fabrication 76
FIGURE 3.23 Zone d'observation C-scan 77
FIGURE 3.24 C-scan plaque du mode primaire A 78
FIGURE 3.25 C-scan plaque du mode primaire B 79
FIGURE 3.26 C-scan plaque du mode primaire C 80
FIGURE 3.27 C-scan plaque du mode primaire D 81
FIGURE 3.28 C-scan plaque du mode secondaire AB 82
FIGURE 3.29 Validation du modèle du degré de cuisson suivant un cycle complexe 85
FIGURE 3.30 Comparaison entre le modèle de viscosité déduit et celle de la fiche technique 86
FIGURE 3.31 Cycle nominal recommandé par Cytec 87
FIGURE 3.32 Évolutions des porosités thermomécaniques et thermodiffusives avec le cycle de Cytec 88

FIGURE 3.33 Cycles brisés en température 89
FIGURE 3.34 Évolution de porosités 90
FIGURE 3.35 Cycle brisé avec retard de pression 91
FIGURE 3.36 cycle brisé avec retard de pression : Évolution de porosités 91
FIGURE 3.37 Influence du cycle de cuisson sur l'évolution de porosités 92
FIGURE 3.38 Design de cycle 93
FIGURE A3.1 cycle de cuisson complexe 108
FIGURE A3.2 cycle complexe : Étape 1 mapping 110
FIGURE A3.3 cycle complexe : Étape 2 mapping 111
FIGURE A3.4 cycle complexe : Étape 3 mapping 112
FIGURE A3.5 cycle complexe : Étape 4 mapping 113

Liste des annexes

Annexe 1 : Krigeage 2D 104

Annexe 2 : Résolution numérique des équations de porosités 107

Annexe 3 : Méthode de mapping de cuisson pour évaluer l'évolution du degré de cuisson suivant un cycle complexe 108

Liste des sigles et abréviations

ASTM	American Society for Testing Materials
LCM	Liquid Composites Molding
RTM	Resine Transfer Molding
VARTM	Vaccum Assisted Resin Transfert Molding
LRI	Liquid Resin Infusion
RFI	Resin Film Infusion
AFP	Automatic Fiber Placement
VARI	Vaccum Assisted Resin Infusion
$\underline{\mathbf{U}}$	Vitesse de la résine
ρ_r	Masse volumique de la résine
$\mathcal{V}$	Volume de contrôle
$\mathcal{S}$	Surface de contrôle
$(x, y, z),\ t$	Coordonnées spatiales et temporelles
ν	Viscosité cinétique
ϕ	Porosité du milieu poreux
V_f	Fraction volumique de fibre
μ	Viscosité dynamique
$\underline{\underline{K}}$	Tenseur de perméabilité
T	Température
α	Degré de cuisson
E_μ	Énergie d'activation Viscqueuse
$\overline{M}_w$	Masse moléculaire moyenne
R	Constante des gaz parfaits
E_α	Énergie d'activation de cuisson
H_τ	chaleur réticulation totale.
DTA	Differential thermal analysis
DSC	Differential Scanning Calorimetry
β_T	Taux de chauffe
σ_{zz}	Contrainte dans les fibres
C_a^*	Nombre capillaire modifié
γ_{FR}	Tension superficielle fibre-résine
ϵ	Taux de vide/Porosité
R_p	Rayon d'une porosité
γ_{LV}	Tension superficielle liquide (résine)-vapeur(gaz)
P_{resine}	Pression de la résine

X_{eau}	Fraction molaire d'eau dans la bulle
C_{resine}	Concentration en eau dans la résine
C_{sat}	La concentration d'eau à la surface de la bulle
W_r	Fraction massique de résine dans le composite
RH_0	Humidité à l'instant initiale du drapage
$ILLS$	InterLaminar Shear Stress
TGA	Thermogravity Analysis
Aw	Densité massique des fibres
ρ_f	Masse volumique des fibres
e_{th}	épaisseur théorique de la plaque
e_{exp}	épaisseur après expérience

INTRODUCTION

Les matériaux composites ont longtemps été indexés comme futuristes : en effet, ils présentent un ratio performance sur poids hors du commun et attirent ainsi beaucoup d'industriels notamment ceux du secteur de l'aéronautique, de l'automobile, du sport, etc. Cependant, leurs méthodes de production restent artisanales : de la production par étalage à la main (hand lay up), aux procédés automatiques d'injections ou de placement, en passant par l'autoclave. Beaucoup de techniques de fabrication ont été inventées et introduites ces cent dernières années en raison de l'élan pris par les composites dans tous les secteurs de développements industriels. La plupart de ces techniques visent d'une part à accroître le rendement de fabrication à l'échelle industrielle, et d'autre part à augmenter les performances du composite, notamment augmenter le taux de fibres, en réduisant les zones sèches et le taux de vide dans la pièce finale. L'ingénierie de la fabrication des composites est reliée à l'expérience, une approche d'essais et d'analyses des erreurs permet d'améliorer les procédés de fabrication. La majeure partie des choix de procédés est dictée par la familiarité et l'expérience, plus que le calcul et la méthodologie. Cette situation conduit à une fabrication non optimale, qui souvent coûte plus que son prix. Depuis quelques années, les industriels ont compris que pour profiter pleinement du marché grandissant des composites, il faut une rentabilité à trois axes, axes orientés respectivement vers les coûts , la quantité et la qualité de la production. Cette rentabilité à trois axes oblige les manufacturiers à se tourner vers des moyens quantitatifs, et qualitatifs pour formuler des méthodologies et procédés de design adaptés pour chaque structure composite. De nos jours, ces moyens restent pour la plupart assez rudimentaires, car souvent mal maîtrisés. La simulation numérique constitue un des outils clés, car permet de reproduire en environnement virtuel, une expérience de fabrication, de détecter les erreurs et de proposer des alternatives. Cependant, de nos jours, les procédés simulés restent très limités et incomplets à cause de leurs complexités.

L'utilisation des matériaux composites a connue au cours des trente dernières années une évolution exceptionnelle, souvent soutenue par l'industrie aéronautique qui ne cesse d'en consommer d'avantages. L'importance des matériaux composites dans l'aéronautique se situe principalement dans les coûts d'exploitations, car la masse avion est un paramètre essentiel pour les concepteurs, la réduire au maximum permet d'une part d'augmenter la masse utile (passagers) et d'autre part de réduire la consommation d'énergie. Les enjeux du monde actuel poussent donc les constructeurs d'avions à se mesurer sur ce plan stratégique de réduction de masse, plan qui séduit une large gamme de compagnies aériennes, toutes soucieuses de réduire leurs coûts d'exploitations et maximiser leurs profits. C'est ainsi que nous pouvons observer que le Boeing $B787$ ainsi que l'Airbus $A350$ ont

une structure réalisée à plus de 50% en composite.L'aéronautique est également l'un des secteurs où la sécurité est la plus élevée. Il faut que l'avion réponde à des normes de qualité avant d'être commercialisé. Ces normes imposent une contrainte essentielle sur les pièces produites. Il faut donc optimiser la production de pièces composites sous une contrainte de qualité définie par des normes, notamment celles de l' ASTM [1].

Éléments de la problématique

Les propriétés mécaniques et physiques des pièces composites fabriquées dépendent fortement du procédé utilisé, cela révèle l'importance d'une aide à la décision conforme pour le "manufacturing" des pièces composites. Dans l'industrie aéronautique, le procédé le plus courant est le moulage préimprégné, cependant il est moins adapté pour les pièces à géométries complexes car le plus souvent manuel, des erreurs humaines seront plus courante .Une alternative consiste à l'usage de procédés directs appelés LCM (Liquid Composites Molding) composés du RTM (Resine Transfert Molding), du LRI (Liquid Resin Infusion), et du RFI (Resin Film infusion). Les procédés LCM sont de plus en plus utilisés pour leurs coûts et stabilités dimensionnelles.

Les procédés LCM cités plus haut ont une importance particulière aussi bien pour l'industrie aéronautique que pour de petits industriels.T.Astrom [1] soutient et démontre que ces procédés par infusion s'adaptent d'une part aux géométries grandes et complexes et d'autre part aux procédés à moules ouverts, et requièrent peu d'investissements. Ces procédés sont particulièrement intéressants, et leurs optimisations ont fait et font encore l'objet de recherches. L'optimisation concerne les paramètres de fabrication qui régissent la qualité de la pièce finale.

Les paramètres de fabrication concernent essentiellement le diagramme temps, températures et pression, ceux-ci permettent de contrôler l'écoulement de la résine à travers sa viscosité. Le mouvement de la résine permet d'optimiser le temps de fabrication, mais aussi le taux de vide dans la pièce, car plus elle est fluide plus elle s'infiltrera entre les interstices des fibres. La pression quant à elle permet de chasser l'excès de résine,ce phénomène est appelé compactage, et augmente le taux de fibre donc la rigidité de la pièce. La pression lors de la fabrication influence aussi le taux de vide par la cavitation. Elle gère donc la répartition, et le taux de micros bulle dans l'écoulement de la résine lors de la fabrication. Les plages de pression, la durée, ainsi que la température jouent un rôle essentiel dans les propriétés de la pièce finale.

Comment peut-on caractériser assez fidèlement les paramètres de fabrications pour ré-

1. American Society for Testing Materials

duire les défauts ? Une attention particulière sera accordée au procédé RFI.

Objectifs de recherche

Les objectifs de la recherche sont de comprendre l'impact des cycles de fabrication sur les propriétés physiques d'un carbone-époxy fabriqué par procédé RFI. Il s'agit donc de réévaluer les équations qui gouvernent les écoulements dans les procédés, de poser les conditions nécessaires que doivent vérifier certains paramètres de fabrication pour améliorer le taux de fibre, et donc réduire le taux de vide entre autres. Tout d'abord, une étude préalable bibliographique nous permettra de décrire un grand nombre de procédés, les plus courants dans l'industrie aéronautique. Les principales équations d'écoulements et de caractérisations pourront être rappelées. La cinétique de cuisson sera exposée, les paramètres de cuisson ainsi que le mode de fabrication RFI seront nos variables à optimiser pour améliorer la qualité physique de la pièce finale. Une étude expérimentale par la suite sera menée, et concernera uniquement la fabrication de plaques rectangulaires. Cela permettra de caractériser les propriétés physiques des pièces fabriquées, d'évaluer finalement l'impact des cycles/mode de fabrication, et de formuler des hypothèses pour l'optimisation du procédé RFI.

Plan du mémoire

Pour atteindre nos objectifs,ce mémoire s'articulera en trois parties :

La première partie est consacrée à la présentation du cadre de l'étude et une revue de littérature. Après une introduction sur les procédés de fabrication, les plus courants utilisés de nos jours dans l'industrie aérospatiale, une modélisation mathématique propre à tous les procédés sera décrite, il s'agit essentiellement de l'écoulement de la résine dans un milieu poreux, et du mécanisme de réticulation ou polymérisation de la résine. Enfin, un modèle d'apparition et de transport de vides sera discuté.

La deuxième partie sera exclusivement expérimentale, une fabrication par RFI de plaques rectangulaires sera réalisée. Des tests physiques seront effectués sur le produit fini fabriqué, afin de caractériser l'impact du cycle/mode de fabrication sur la qualité physique de la pièce notamment le taux de vide.

La Troisième et dernière partie consistera uniquement l'exposition des résultats expérimentaux et de modélisations. Une analyse et discutions entre résultats expérimentaux et numériques nous permettrons de proposer des alternatives pour l'optimisation du procédé RFI .

Une conclusion viendra rappeler les points clés de ce mémoire et nous permettra de poser des jalons de perspectives pour continuer à améliorer les connaissances et maîtrises des procédés d'infusions de résine, principalement le RFI.

Chapitre 1

REVUE DE LITTÉRATURE

Dans cette section, nous allons exposer une revue des importants travaux effectués afin de mieux comprendre le cadre, les objectifs et les potentiels compléments du présent travail. La bibliographie étudiée a été concentrée sur les aspects suivant : une généralité sur les composites, la présentation et définition des procédés les plus répandus dans le milieu aérospatial, une modélisation mathématique des procédés de fabrication et un modèle de transport de vide viendra conclure cette section.

1.1 Description du matériau étudié

1.1.1 Généralité sur les composites

Un matériau composite en générale est le produit de la combinaison de deux matériaux de nature différente. En ingénierie, la définition peut être étendue à la combinaison de deux ou plusieurs matériaux distincts dans le but de supprimer les propriétés indésirables au profit des propriétés voulues. Les combinaisons à l'échelle atomique telle que les alliages de métaux et les mélanges de polymères sont exclus de cette définition [1].

Dans les composites à base de polymères, les composants sont essentiellement une résine polymère et des renforts fibreux. Le rôle de la résine, encore appelée matrice, donne au composite un beau fini de surface, une bonne durabilité et tolérance à son environnement. Les fibres aussi connues sous le nom de phase de renforts, assurent la tenue des charges appliquées au composite, réduisent les contraintes résiduelles dans la structure, et sont responsables de la déformation macroscopique du composite [1, 2].

Du point de vue du procédé et de la fabrication, le type de la matrice joue un rôle essentiel. Il existe deux types de résine : les thermodurcissables utilisés pour la fabrication des composites, elles sont 50 à 500 fois plus visqueuses que l'eau. Elles permettent de combler l'espace vide qui sévit entre les fibres. Nous verrons plus tard que ce type de matrice requière une étape de cuisson [1].L'étape de cuisson permet de produire une réaction chimique au niveau des chaînes de liaisons polymères, dont l'effet macroscopique sera : la baisse et la hausse de la viscosité, cela permet de contrôler le temps de remplissage et le taux de

1. diagramme Température-Temps-Transformation qui conduit à la polymérisation

vide. Quant à la seconde catégorie de résines, appelées thermoplastiques, elles sont utilisées pour les applications plastiques. Les résines thermoplastiques sont des millions de fois plus visqueuses que l'eau. Il est donc difficile de les faire couler et remplir les minuscules pores entres les fibres. Le tableau 1.1 résume les résines thermodurcissables , communément utilisées par les industriels du composite.

Les équations constitutives qui décrivent le comportement chimio rhéologique des résines thermodurcissables comme l'influence de la température, le module de cisaillement, le degré de cuisson, sur la viscosité jouent un important rôle dans les étapes de la fabrication du matériau composite.

Les renforts quant à eux, n'influencent pas de manière significative la fabrication. Cependant, si les fibres sont courtes, leurs rapports de forme [2] seront plus importants pour l'écoulement de la résine en affectant sa viscosité [3] lors de la fabrication.Pour les fibres continues, leurs architectures jouent un rôle mineur lors de la fabrication. Généralement, la facilité du procédé décroît des fibres courtes, discontinues aux fibres longues et continues.Quant à la performance du produit fini elle fait l'effet contraire.

TABLEAU 1.1 Propriétés et applications typiques des résines thermodurcissables les plus répandues [4]

Résines thermodurcissables les plus rependues			
Nom / Abréviation	plage de température de distorsion ° C	propriétés importantes	Exemples d'applications
Polyester in saturé / UP	60-120	bonne résistante chimique, faible résistance en fatigue et forte inflammabilité	partie structurale des bateaux, voitures, quelques articles de sports et loisirs
Epoxy / EP	90-200	haute performance en résistance et rigidité,	parties structurales des aéronefs :Hélicoptère, pâles de rotor, fuselages, etc.
Phenolics / PF	120-200	haute rigidité, mais fragile, inflammable	circuits imprimés, intérieurs des aéronefs, voitures, etc.
Vinylesters / VE	100-130	cuisson à température ambiante, haute résistance chimique, résistance mécanique, et ductilité	industries marines, car haute résistance à la corrosion

2. Rapport du diamètre sur la longueur

1.1.2 la matrice époxy

Les composites à base de carbone-époxy sont très largement répandus à cause de leurs propriétés remarquables. La résine époxy se caractérise par le groupement époxy comme le montre la figure 1.1 ci-dessous. Ce groupement illustrée sur la figure 1.1 joue un rôle

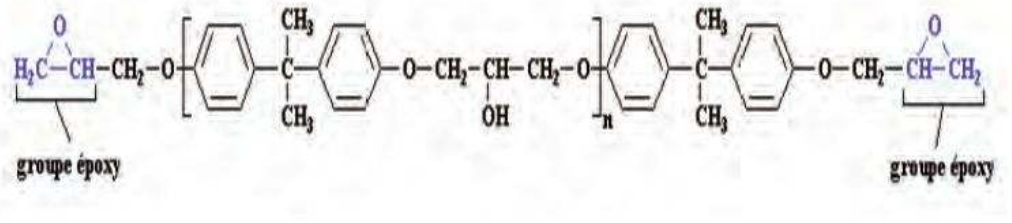


FIGURE 1.1 Groupement Epoxy dans la résine [4]

majeur dans les propriétés de ce dernier, notamment par le biais de la réactivité de celle-ci : temps de gel, réticulations... La formulation la plus simple est le $DGEBA$, dont la formule structurelle peut être trouvée dans le livre [4] . L'équivalent époxy EE est défini comme étant la masse de résine contenant une fonction époxyde.Le tableau 1.2 donne les principales caractéristiques des résines époxy.

1.1.3 Le renfort carbone

Les fibres de carbone se distinguent des autres fibres par un ratio résistance en traction/poids élevé. Il existe des fibres à haut module, et des fibres à haute résistance. Néanmoins prises dans sa globalité, les fibres de carbone offrent des caractéristiques très intéressantes et se retrouvent ainsi en première loge pour les applications aéronautiques. Le tableau 1.3 résume les propriétés des fibres de carbone.

Les fibres peuvent être sous diverses formes, tissées ou unidirectionnelles.

Parmi les fibres tissées, on trouve :

∗ des tissus à mat aléatoire (voir figure 1.2)

∗ des tissus $2D$ dont quelques-uns sont illustrés sur la figure 1.3

Il est à mentionner l'existence de tissus $3D$, voir figure [4]. En pratique dans l'industrie aéronautique on utilise le plus souvent des prés imprégnés, c'est un rouleau de fibres tissées ou non, avec un film de résine généralement solide partiellement réticulé.

TABLEAU 1.2 Caractéristiques Principales de la résine époxy [4]

Résine Epoxy		
Propriétés	Avantages	Inconvénients
1. $T^{max}_{oprationnelle}$ = 180°C à 250 ∘ C 2. gravité spécifique=1.2 à 1.4g/cm^3 3. Résistance mécanique= 50 à 90MPa 4. Module élastique=2.5 à4.0GPa 5. Coeff. Poisson=0.2 à 0.33 6. retrait =1 [(a)]à 5% 7. Allong.rupture=2 à 6%	1. grande plage de propriétés mécaniques selon les matières premières 2. Un faible retrait pendant la cuisson 3. bonne résistance aux produits chimiques 4. bonne stabilité dimensionnelle et thermique 5. excellente adhérence aux surfaces 6. Tension superficielle faible aux surfaces	1. Coût élevé 2. Temps de polymérisation long 3. Viscosité élevée(p/r polyester) 4. Résistances limitées à certains agents organiques 5. Nécessité d'un agent démoulant

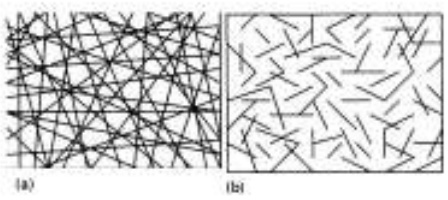


FIGURE 1.2 (a) mat de fibre longue. (b) mat de fibre courte [4]

TABLEAU 1.3 Caractéristiques Principales des fibres de carbone [4]

Fibres de carbone		
Propriétés	Avantages	Inconvénients
1. Diamètre=5 à $10\mu m$ 2. densité=1.8 à $2.2g/cm^3$ 3. Résistance mécanique= 1.5 à $5.5GPa$ 4. Module élastique=220 à$700GPa$ 5. Coeff. Poisson=0.2 6. Allong. rupture=0.4 à 1.8%	1. Rapport résistance/poids élevé 2. Rapport module/poids élevé 3. Expansion thermique faible 4. haute résistance à la fatigue 5. Insensibilité à l'humidité 6. Usinage facile(p/r Kevlar)	1. Coût élevé 2. faible résistance au choc 3. haute conductivité électrique 4. Imprégnation difficile 5. Rayon de courbure élevé ($\geq 20mm$)

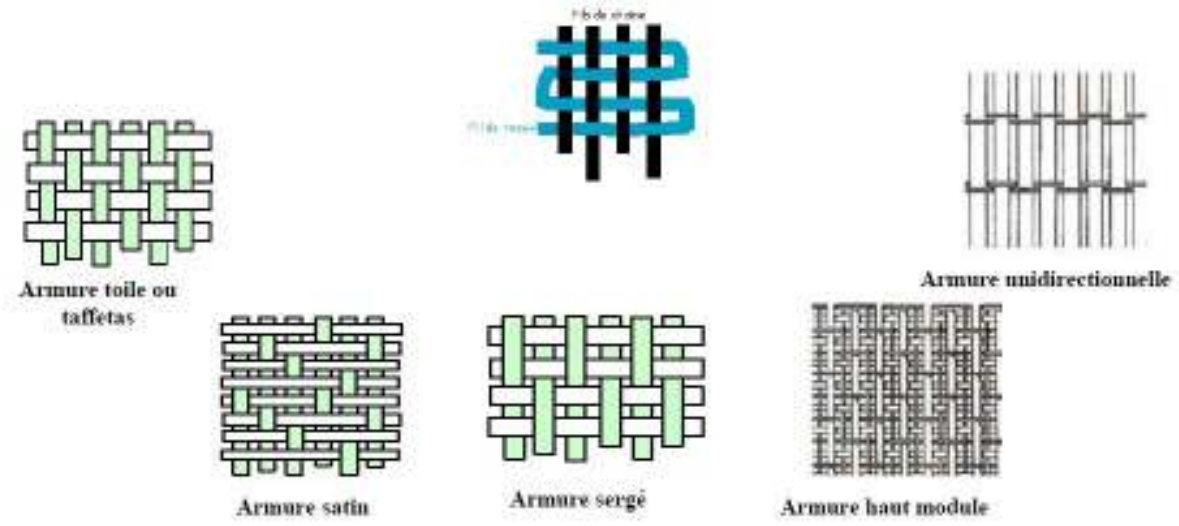


FIGURE 1.3 différents tissus de fibres [4]

1.2 Présentations des procédés de fabrication en aéronautiques

1.2.1 Généralités

Les procédés de conceptions des composites peuvent être classés en deux grandes catégories :

∗ Les procédés par voie humide, où les fibres et la résine sont mélangées, le composé résultant du mélange est un préimprégné. Un agent de pontage chimique permet de maintenir la résine dans un état partiellement réticulé appelé B-stage. Il doit être réfrigéré jusqu'à utilisation. Les préimprégnés sont généralement utilisés dans le procédé en autoclave. Les coûts de stockage et de matières premières sont très élevés.

∗ Les procédés par voie sèche, LCM qui sont moins chère comparés à la première catégorie. Les fibres et la résine ne sont pas mixées avant le drapage. Généralement, la résine vient épouser le drapage des fibres au cours de l'injection. Il existe deux catégories dans les procédés LCM : l'infusion(écoulement par infiltration de la résine), et l'injection (écoulement sous pression de la résine). Dans le secteur de l'aéronautique les plus répandues sont : en terme d'injection le RTM , et d'infusion le RFI

1.2.2 Technologie préimprégnée

la technologie de préimprégnés est de loin la plus utilisée dans l'industrie aéronautique, car elle permet de fabriquer avec plus d'aisance des matériaux de bonne qualité mécanique.

$$\text{préimprégné} = \underbrace{\text{Fibres sèches}}_{\text{non périssable}} + \underbrace{\text{Résine organique}}_{\text{périssable, car résine à B-Stage}}$$

Le " B-Stage" est un un état de polymérisation partiel(δ).$\delta = f(temps, Température)$. On dispose de tissus préimprégnés (figure 1.4), de faisceaux de fibres orientées et préimprégnées. De filaments unitaires de fibres préimprégnés sous forme de rouleaux. L'avancement de la réaction de polymérisation est contrôlé de manière à optimiser les caractéristiques suivantes :

1. Pégosité apte au drapage
2. longue durée de vie dans la salle de drapage
3. bonne adhérence entre couches du stratifié

L' optimum est assuré par un stockage à $-18°C$
Le déstockage et l'utilisation consistent à :

1. sortir de la chambre froide environ 12h avant la mise en œuvre
2. laisser réchauffer dans l'emballage plastique pour éviter la reprise de l'humidité

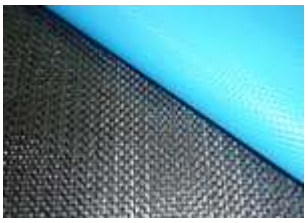


FIGURE 1.4 tissu préimprégné de carbone

1.2.2.1 Découpe et Drapage

Pour réaliser des formes complexes, l'on doit disposer d'un système de découpe assez fiable. Généralement, deux grands groupes de moyens de découpe sont à signaler :
∗ **Moyens manuels**

1. Cutter
2. Ciseaux
3. Lames

∗ **Moyens automatiques**

1. Jet fluide (chargé ou pas)
2. Couteaux mécaniques
3. Couteaux ultras sonores

Le drapage consiste à la dépose des découpes de préimprégnés sur un moule à forme connexe ou plate en respectant les angles d'orientations de chaque couche. Il existe trois grandes familles de drapage qui sont :

1. Drapage manuel
2. Drapage Assisté (aux lasers)
3. Drapage Automatisé

1.2.2.2 Cuisson par Autoclave

L'autoclave (figure 1.5) est une enceinte où l'on peut régler la température et la pression simultanément. Elle sert donc à la cuisson d'un drapage déjà réalisé. Le drapage se fait généralement dans une salle blanche (figure 1.6)

FIGURE 1.5 Enceinte d'autoclave pour la cuisson

FIGURE 1.6 Salle Blanche pour la découpe des fibres

La schématique générale est la suivante :
On utilise généralement des tissus préimprégnés de résine, la découpe peut se faire à la

main, mais généralement est faite par des robots pour des formes complexes. Une projection laser peut être également utilisée pour dessiner les contours de la pièce et faciliter le drapage manuel de l'opérateur.L'opérateur peut être un robot comme dans le cas de l'AFP(Placement automatique des fibres) ou un humain. La pièce est ensuite placée dans l'autoclave, pour la cuisson.

L'autoclave est un bon moyen pour cuire les pièces composites, nous verrons que la plupart des procédés en aéronautique sont cuits en autoclave.

La cuisson est le terme employé en substitut de la polymérisation. Elle consiste en une mise sous vide accompagnée d'une montée en température qui abaisse la viscosité de la résine qui migre entre les plis du stratifié. Par la suite une montée en pression évacuera l'excès de résine, il s'en suit un gel rapide de la résine qui achève sa polymérisation. deux points sont à soulever dans les procédés en autoclave :

1. Un vide trop intense peut entraîner un dégazage de la résine (évaporation du solvant)$\Longrightarrow$ présence de zones sèches/porosités.
2. Une pression prématurée peut entraîner une augmentation trop intense de la fraction volumique de fibre et peut aboutir à la présence de zones sèches/porosités.

La température et la pression d'un autoclave sont contrôlées suivant un cycle. Il existe différentes méthodes de contrôle, allant du modèle empirique au modèle expert nécessitant une régulation automatique en passant par le modèle théorique sans régulation.
en se basant sur les développement de P. R.Ciriscioli et coll. [5], il existe trois principaux modèles de contrôle en autoclave :
$*$ le modèle empirique est uniquement basé sur l'expérience d'un grand nombre d'échantillons fabriqués, et est généralement donné par le fournisseur des résines ou des préimprégnés.
$*$ le modèle analytique est basé sur les lois théoriques de transport, permettant d'évaluer l'évolution de la température et de la pression en fonction des propriétés voulues
$*$ Le modèle expert est une combinaison des deux modèles précédents et fait appel à une régulation automatique des valeurs actuelles de température et de pression en fonction des erreurs et écarts de mesures entre les propriétés actuelles (expériences) et celles attendues.C'est un modèle auto régulant (figure 1.7)

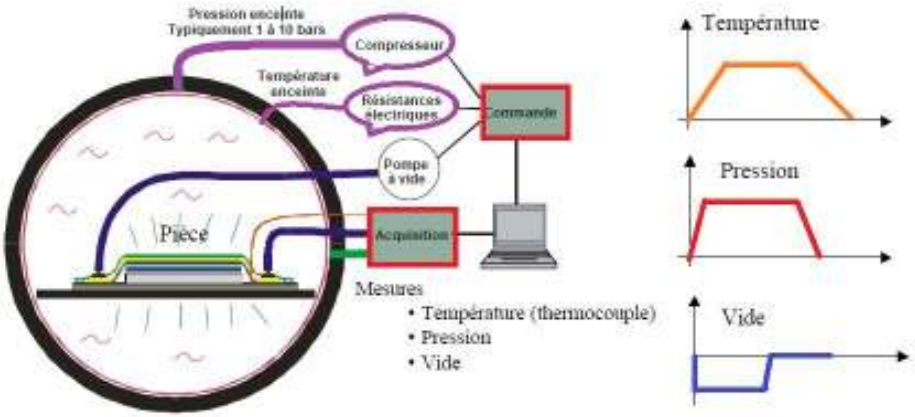


FIGURE 1.7 Système expert de cuisson

Le tableau 1.4 résume les caractéristiques du procédé en autoclave.

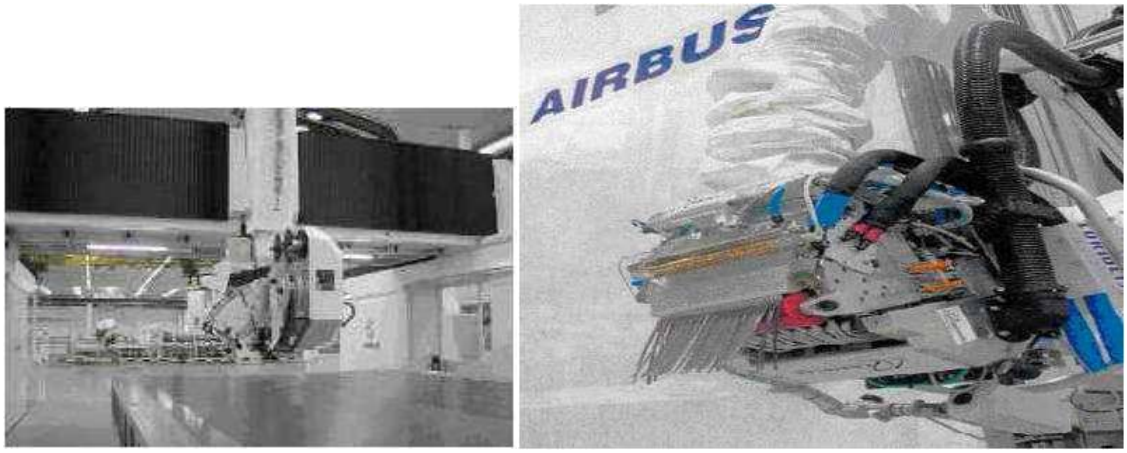
TABLEAU 1.4 Caractéristiques principales de l'autoclave

Drapage et Autoclave	
Avantages	Inconvénients
1. Orientation des fibres dans la direction voulue 2. Composite à haute performance 3. Possibilité de pièce à dimensions complexes	1. Main d'œuvre importante 2. Requiert une salle blanche pour le drapage 3. Très coûteux $\sim 100\$/heure$ 4. Cadence de fabrication faible

1.2.3 Drapage par placement automatique des fibres :AFP

Le procédé de placement des fibres (AFP) a été développé vers la fin des années 70. Cependant sa viabilité commerciale n'est apparue qu'au début des années 2000.L'AFP consiste à appliquer un ruban de préimprégné à l'aide d'une tête robotisée sur un moule à géométrie simple ou complexe (voir figure 2.2). Les bobines de préimprégné sont conservées dans une enceinte frigorifiée. Un système de roulement permet l'acheminement des rouleaux jusqu'à la tête du robot.Les fibres restent tendues entre le rouleau et la tête du robot. Le préimprégné une fois au niveau de la tête du robot est chauffé, ce qui permet un écoulement de la résine qui devient peu visqueuse. C'est ainsi que le préimprégné acquière une propriété d'adhésivité, et se colle bien au moule. Une fois adhésif, un rouleau de compactage vient appliquer le préimprégné au moule (figure 1.9). Ce compactage permet d'éviter la formation de gaps et de porosité [6]. Puis le ruban de pré imprégné est découpé sur les contours du moule par la tête du robot qui dispose d'outils de découpes. La cuisson et polymérisation se

fait ensuite à l'autoclave. Ce procédé apparaît comme une forme robuste pour le drapage.



(a) machine AFP (b) Tête de la machine AFP

FIGURE 1.8 Tête du robot de placement de fibres

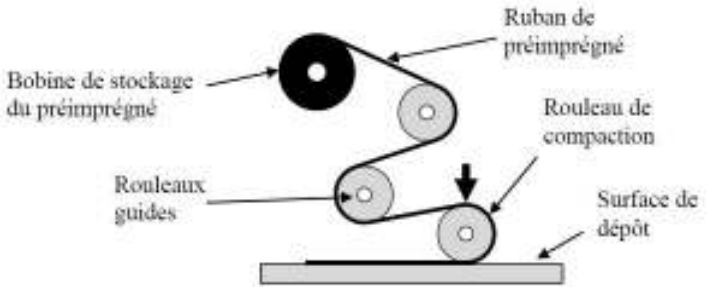


FIGURE 1.9 Principe du placement de fibres [6]

Le tableau 1.5 résume les caractéristiques de l'AFP.

TABLEAU 1.5 Caractéristiques principales du procédé AFP

placement de fibre	
Avantages	Inconvénients [6]
1. Réduction du drapage manuel très laborieux et imprécis 2. Composite à haute performance 3. Possibilité de pièce à dimensions complexes 4. Structures à rigidité variable	1. Problème de planéité 2. Problème de gaps et overlaps 3. Problème de tow twist (ruban se retourne accidentellement) 4. Investissement important en robotique

1.2.4 Liquide composite molding

1.2.4.1 Liquide composite molding : injection RTM

Le procédé RTM illustré sur la figure 1.10, consiste : à injecter de la résine liquide dans une préforme fibreuse sèche contenue dans un moule recouvert du contre-moule. L'intérieur du moule peut être sous pression. La cuisson se fait en chauffant l'intérieur du moule. Les points d'injection de la résine, la pression d'injection et la température de cuisson sont des paramètres définis et dépendent de la complexité de la pièce. Un choix judicieux de paramètres permet de gagner en temps et qualité de la pièce. Les ports d'évents permettent d'aspirer l'excès de résine. Un mauvais choix des évents est source d'apparition de zones sèches/porosités dans le produit fini. Le procédé RTM reste coûteux, car l'utilisation d'un moule et contre-moule est nécessaire. Le procédé VARTM [3] est une variante du RTM où le contre-moule est remplacé par un sac à vide comme le procédé d'autoclave. Cependant, le VARTM est moyennement utilisé, car les performances mécaniques sont moindres que le procédé RTM, Il est l'un des procédés dominants dans l'industrie navale.Le tableau 1.6 résume les caractéristiques du procédé d'injection par RTM.

3. Vaccum Assisted Resin Transfert Molding

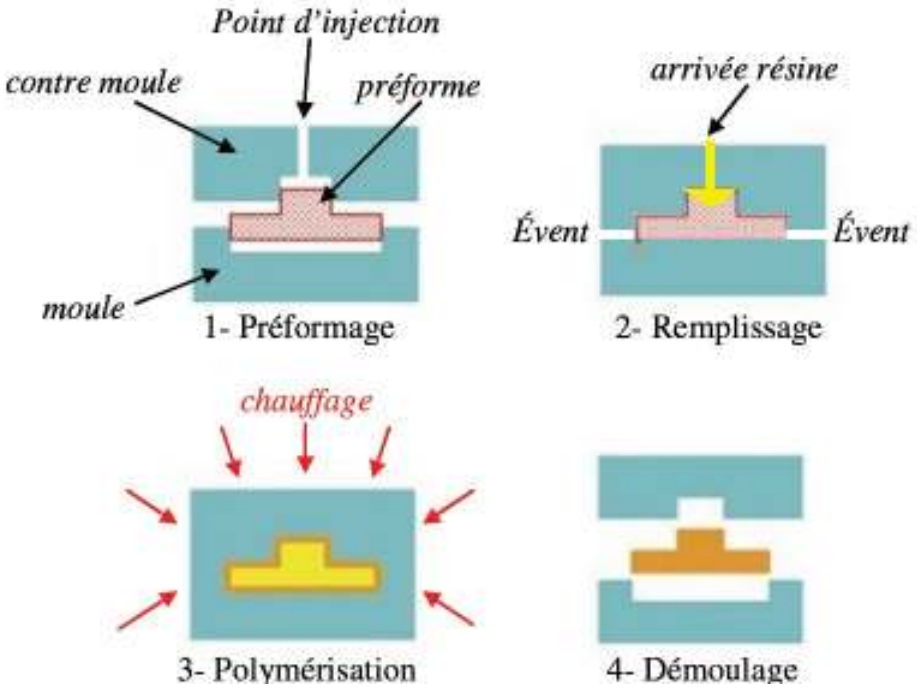


FIGURE 1.10 Étapes d'exécution du procédé RTM [7]

TABLEAU 1.6 Caractéristiques principales de l'injection RTM

Injection RTM	
Avantages	Inconvénients
1. Géométries complexes dans la mesure du moule complexe 2. Composite à haute performance 3. Rapide en terme de cadence de production	1. Besoin du moule et du contre-moule 2. Chauffer le moule est très chère

1.2.4.2 Liquide Composite molding : l'infusion RFI

Le principe du procédé RFI illustré sur la figure 1.11, est de placer un film de résine solide sur le moule, par dessus duquel on drape la préforme fibreuse sèche. Le film de résine est à B-Stage (partiellement polymérisé).Un contre-moule perforé peut être utilisé pour améliorer le compactage, des ports d'évents peuvent être éventuellement placés afin d'absorber l'excès de résine. Sous un cycle de température et de pression, le film de résine perd sa forte viscosité et s'écoule dans la préforme fibreuse, la pression permet de chasser l'excès de résine pour consolider la pièce. Tout comme le procédé en autoclave, le moment d'application de la pression joue un rôle sur la formation de zones sèches/porosités. Le

cycle doit être au préalable bien choisi.

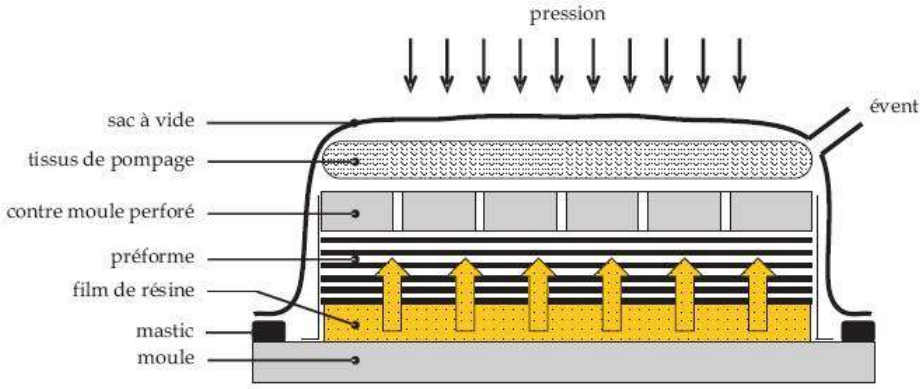


FIGURE 1.11 Procédé RFI [8]

1.2.4.3 Liquide composite molding : l'infusion LRI

Le procédé LRI illustré sur la figure 1.12, s'apparente au procédé RFI par sa nature d'infusion.La différence est dans la nature de la résine qui est sous forme liquide. On drape au préalable la préforme fibreuse sèche dans le moule. Un tissu drainant est déposé par-dessus la préforme et permet de former une couche de résine. L'ensemble est mis sous vide et sous pression ce qui permet à la résine dans le drainant d'infuser la pièce dans le sens de son épaisseur. Un cycle de température permet de mieux contrôler l'infusion et la polymérisation de la pièce. De même que le RFI un contre-moule perforé et des ports d'évents permettent d'assurer un compactage meilleur.

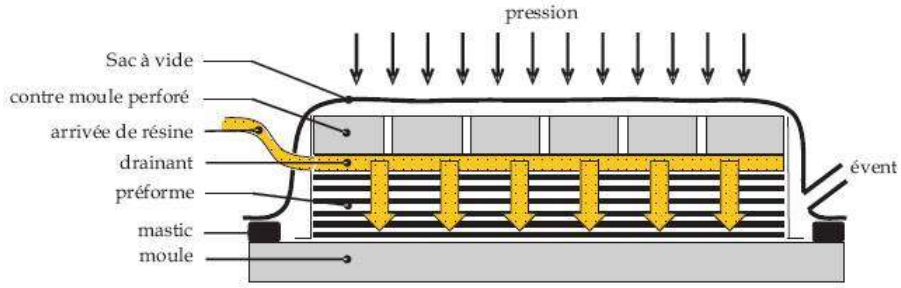


FIGURE 1.12 Procédé LRI [8]

Le tableau 1.7 résume les caractéristiques de l'infusion (RFI/LRI)

1.2.5 Simulation et enjeux économiques

L'histoire retiendra que la détermination des paramètres optimaux de fabrications a été effectuée pour le plus souvent par un couple d'essais expérimentaux et d'erreurs. Cette

TABLEAU 1.7 Caractéristiques de l'infusion (RFI/LRI)

Infusion (RFI et LRI)	
Avantages	Inconvénients
1. Géométries complexes avec des épaisseurs 2. Composite à haute performance, taux volumique de fibre élevée 3. Mise en œuvre aisée et peu couteuse	1. Sac $\Longrightarrow$ épaisseurs non contrôlées donc, le taux de fibre n'est pas uniforme. 2. Perméabilité transverse de la préforme joue un rôle important, mais est très difficilement quantifiable

technique archaïque coûte beaucoup en temps et en argent, et est pour le moins toujours employée dans des circonstances où les modèles et simulations font défaut.Nous sommes à l'aube de la simulation numérique au niveau des procédés de fabrication composites, très peu de procédés sont maîtrisés en termes de modèles et de simulations. La simulation est l'un des paramètres clés des industriels, elle permet de sauver le temps et le budget liés aux expériences. La simulation sous-entend la description en environnement complètement virtuel du procédé au moyen d'équations adéquates. Une description mathématique du changement d'état des paramètres du procédé est donc un préalable à la simulation. Cette description mathématique passe par les lois de la physique telles que la conservation de la masse, de l'énergie, de la quantité de mouvements. Ces descriptions physiques du procédé doivent ensuite être liées aux changements de phase du composite, changements gouvernés par la cinétique de cuisson de la résine. Finalement on complètera cette description par la formulation d'hypothèses et de conditions aux limites. Le système d'équations couplé obtenu n'est généralement pas soluble analytiquement et requiert une formulation et résolution numérique. La formulation numérique passe par les différences finies ou les éléments finis, car il s'agit d'équations de conservation. Le logiciel PAM RTM du groupe ESI permet la simulation d'un grand nombre de procédés LCM dont le RTM, VARTM, le VARI [4]. Le Groupe ESI ces dernières années a connu un succès majeur dans ce domaine, car il offre un environnement de fabrication virtuel des pièces composites. Le logiciel PAM RTM s'appuie en grande partie sur la librairie $Pro-Flot^{TM}$ [9]. Cette librairie est à la base du solveur $LCM-FLOT$ développé à l'école polytechnique de Montréal en 1998.

1.3 Écoulement de la résine dans les procédés

Le mouvement de la résine lors du processus de fabrication a un impact majeur sur la qualité de la pièce finale.Les équation développées dans cette partie sont issues de [1–3, 5]

4. Vaccum Assisted Resin Infusion utilisé majoritairement par l'industrie navale

1.3.1 Écoulement et conservation de la masse en générale

Nous allons dans cette partie considérer l'écoulement d'un fluide (en occurrence la résine) dans une région avec une vitesse $\underline{\mathbf{U}}$ de densité ρ_r. La modélisation dépend du repérage, nous utiliserons le système cartésien :$\underline{\mathbf{U}}$ et ρ_r sont fonctions des coordonnées spatiales x, y, z et du temps t ainsi on note $\underline{\mathbf{U}}(x, y, z, t)$ la vitesse d'écoulement de la résine et $\rho_r(x, y, z)$ sa densité. La masse de fluide dans le volume arbitraire fixe ci-dessous appelé volume de contrôle $\mathcal{V}$ à tout temps t est :

$$M = \int_{\mathcal{V}} \rho_r dv$$

La variation temporelle de la masse M est donnée par :

$$\frac{dM}{dt} = \frac{d}{dt}\left[\int_{\mathcal{V}} \rho_r(x, y, z, t)dv\right] = \int_{\mathcal{V}} \frac{\partial \rho_r}{\partial t}$$

La dérivée totale du terme à gauche de l'intégrale est indiquée à l'intérieur en utilisant le théorème de Leibniz[5] les termes additionnels de Leibniz sont nuls, car le volume de contrôle $\mathcal{V}$ est fixe dans l'espace. La quantité de fluide q qui entre dans $\mathcal{V}$ par la surface $\mathcal{S}$ est une intégrale de flux :

$$q = -\int_S \rho \underline{n} \mathbf{U} dS$$

avec $\underline{n}$ la normale extérieure à la surface $\mathcal{S}$. S'il y'a un puits dans $\mathcal{V}$ qui absorbe de la masse de fluide avec un taux massique /volume/ temps s, alors la quantité r de masse perdue dans $\mathcal{V}$ au temps t sera :

$$r = \int_{\mathcal{V}} s(x, y, z, t)dv$$

Le taux d'augmentation de masse dans le volume $\mathcal{V}$ est égale donc à la différence entre la masse entrante à travers la surface $\mathcal{S}$ et celle perdue dans $\mathcal{V}$, il s'en suit que :

$$\begin{aligned}
\int_{\mathcal{V}} \frac{\partial \rho_r}{\partial t} dv &= q - r \\
\int_{\mathcal{V}} \frac{\partial \rho_r}{\partial t} dv &= -\int_S \rho_r \underline{n} \underline{\mathbf{U}} dS - \int_v s(x, y, z, t)dv \\
\int_{\mathcal{V}} \frac{\partial \rho_r}{\partial t} dv + \int_v div(\rho_r \underline{\mathbf{U}})dv + \int_v s(x, y, z, t)dv &= 0 \\
\int_{\mathcal{V}} \left[\frac{\partial \rho_r}{\partial t} dv + div(\rho_r \underline{\mathbf{U}})dv + s\right] dv &= 0
\end{aligned}$$

Le volume de contrôle $\mathcal{V}$ est supposé être une forme arbitraire dans une position arbitraire

5. $\frac{d}{dt}\left[\int_{A(t)}^{B(t)} f(x,t)dx\right] = \int_{A(t)}^{B(t)} \frac{\partial f(x,t)}{\partial t} dx + \frac{dB}{dt} f(B(t), t) - \frac{dA}{dt} f(A(t), t)$

de l'écoulement. Donc, localement on peut écrire l'équation de continuité générale suivante :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + div(\rho \mathbf{U}) + s = 0$$

$*$ À l'absence de puits (écoulement sans perte de masse) $\Longrightarrow s = 0$.
$*$ Pour un fluide incompressible la masse volumique ρ est une constante le long d'une ligne de mouvement $\Longrightarrow \frac{d\rho(x,y,z,t)}{dt} = 0$
$*$ Pour un écoulement permanent (vitesse quasi invariante en un point de l'écoulement) $\Longrightarrow \frac{\partial .}{\partial t} = 0$

1.3.2 Écoulement et conservation de la masse en milieu poreux

Un milieu poreux est un milieu en présence de fibre, la figure 1.13 nous montre un exemple de milieu poreux formé de fibres en mat aléatoire L'écoulement dans un milieu poreux est régi par trois principales hypothèses :

1. La résine est incompressibles, ce qui rend l'écoulement incompressible
2. La vitesse de l'écoulement est faible, il s'agit principalement d'infiltration
3. L'écoulement peut être considéré comme quasi statique : la quasi-stationnarité est physiquement équivalente à une succession d'écoulements stationnaires. En fixant l'espace, la valeur doit être indépendante du temps. L'approche quasi stationnaire se justifie si le transfert de mouvement aux conditions limites est immédiat, cela est assuré si le matériau possède une grande inertie. La viscosité cinétique ν qui gouverne généralement la quantité de mouvement du fluide est très élevée comparativement à celle de l'eau. L'hypothèse est donc valide pour les résines.

L'équation de conservation est quasi similaire au cas général d'écoulement. Le volume $\mathcal{V}$ contient les fibres + la résine. On définit la quantité

$$\rho_a = \phi S_{sat} \rho_r$$

avec :
ρ_a est la densité équivalente de la résine dans le milieu poreux
S_{sat} désigne le taux de saturation du milieu poreux : Celui-ci est complètement vide si $S_{sat} = 0$ et rempli si $S_{sat} = 1$.S_{sat} varie entre $0 - 1$
L'équation de conservation de la masse dans le milieu poreux s'écrira donc :

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} + div(\rho_a \ \underline{\mathbf{U}}) + s = 0$$

même si la densité de la résine ρ_r est quasi-constante (légère augmentation durant la phase de cuisson), ce n'est le cas ni de la porosité ni de la saturation donc de ρ_a.

Des simplifications de S_{sat} et ϕ peuvent être apportées selon le procédé mis en équation [3]

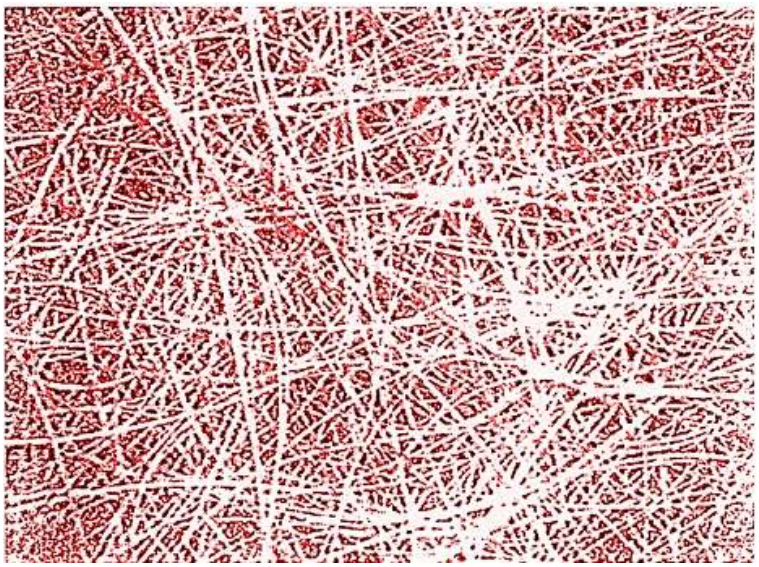


FIGURE 1.13 Vue d'ensemble d'un milieu poreux

1.3.3 Mouvement de la résine dans les canaux libres du milieu poreux (échelle mésoscopique)

Dans les canaux libres du milieu poreux, le mouvement est incompressible et lent (quasi stationnaire). La conservation de masse générale en absence de pertes de masse implique donc l'égalité suivante :

$$div(\underline{\mathbf{U}}) = 0$$

Le comportement de la résine est celui d'un fluide newtonien incompressible [7]. Cette hypothèse est classique pour la modélisation des procédés par infusion donc l'équation de mouvement est donnée de manière générale comme suit :

$$div(\underline{\underline{\sigma}}) + \underline{f} = \rho_r \frac{d\underline{\mathbf{U}}}{dt}$$

Le nombre de Reynold R_e [6] dans les procédés d'infusions indiquent des écoulements de type laminaire rampant, car très faible [7]. Les forces d'inertie mises en jeu dans ces procédés peuvent donc être négligées devant les forces visqueuses. Par ailleurs
$*$ $\underline{\underline{\sigma}}$ représente le tenseur de contrainte de Cauchy. $\underline{\underline{\sigma}} = -p\underline{\underline{I}} + \underline{\underline{\tau}}$ pour un fluide newtonien le tenseur déviatorique des contraintes $\underline{\underline{\tau}}$ est relié à la vitesse du fluide par la relation

6. $R_e = \frac{\text{Forces d'inertie}}{\text{Forces visqueuses}}$

suivante : $\underline{\underline{\tau}} = \lambda div(\underline{\mathbf{U}})\underline{\underline{I}} + \mu\left[\underline{\underline{\nabla \mathbf{U}}} + \underline{\underline{\nabla U^T}}\right]$. La formule de Stokes[7] relie le coefficient de Lamé λ à la viscosité dynamique μ en imposant un équilibre entre pressions mécaniques et thermodynamiques. Il en vient que $\underline{\underline{\sigma}} = \mu\left[-\frac{2}{3}div(\underline{\mathbf{U}}) + \underline{\underline{\nabla \mathbf{U}}} + \underline{\underline{\nabla U^T}}\right]$.
$*$ $\underline{f}$ représente un vecteur force volumique dans le milieu. De manière générale

$$\underline{f} = \begin{bmatrix} \rho g_x \\ \rho g_y \\ \rho g_z \end{bmatrix}$$

dans un référentiel non inertiel $g_x, g_y, g_z \neq 0$, mais dans un référentiel inertiel $g_x = g_y = 0, g_z = g$ où g est la constante de pesanteur du lieu de l'écoulement ($g \approx 9.8ms^{-2}$ sur terre). En tenant compte de la conservation de la masse, et en négligeant les forces d'inertie, il en vient que l'écoulement de la résine dans les canaux préférentiels est régi par l'équation de Stokes suivante :

$$-\nabla p + \mu\nabla^2\mathbf{U} = 0$$

1.3.4 Perméabilité du milieu et échelle macroscopique de l'écoulement

L'équation de mouvement de la résine décrite plus haut devrait être résolue dans les canaux ou réseaux fibreux du milieu poreux.Il en existe des millions de canaux dans un simple échantillon type (cf. figure 1.13).Ces canaux sont créés par l'arrangement des fibres. En somme, l'écoulement doit être résolu dans chaque micro canal formé entre amas de fibres. Il serait impossible même pour le plus sophistiqué des ordinateurs d'y parvenir. Il s'avère donc très utile de pouvoir décrire une relation macroscopique entre l'écoulement et son gradient de pression génératrice.C'est ainsi que la loi de H. Darcy [10] permet d'imbriquer l'effet des canaux d'écoulement dans un paramètre unique appelé *perméabilité*. Cette *perméabilité* caractérise la mobilité de la résine dans le milieu poreux. La loi de H. Darcy stipule que le débit qui traverse un milieu poreux de longueur L suit la relation suivante :

$$Q = \frac{-AK\Delta p}{\mu L}$$

$*$ Q étant le débit de fluide (la résine)
$*$ A est la section de l'écoulement
$*$ Δp le gradient de pression de l'écoulement (négatif, car une dépressurisation est génératrice d'écoulement)
$*$ K la perméabilité du milieu,son unité est le m^2.
La loi de Darcy peut également s'écrire de la sorte :

7. $\lambda = -\frac{2}{3}\mu$

$$\frac{Q}{A} = \underline{\mathbf{U}} = -\underline{\underline{K}}\Delta p \frac{1}{\mu L}$$

avec $\overline{\mathbf{U}}$ vitesse moyenne de H.Darcy.La vitesse macroscopique de l'écoulement est donc lié à sa caractéristique de perméabilité.
On comprend donc que la perméabilité dépendra de la fraction volumique de fibre V_f et peut aussi être anisotrope suivant la direction de l'écoulement. De manière conventionnelle on la représente par un tenseur d'ordre 2 suivant les trois directions (x, y, z) possible de l'écoulement. En écoulement stationnaire le tenseur $\underline{\underline{K}}$ est symétrique

$$\underline{\underline{K}} = \begin{bmatrix} K_x & K_{xy} & K_{xz} \\ K_{xy} & K_y & K_{yz} \\ K_{xz} & K_{yz} & K_z \end{bmatrix}$$

Ce tenseur peut être simplifié si on associe un des axes du repère (x, y, z) à la direction des fibres : Le plus commun serait de prendre x suivant la longueur des fibres, y suivant la transversale des fibres et z suivant la perpendiculaire au plan (xy) .

$$\underline{\underline{K}} = \begin{bmatrix} K_x & 0 & 0 \\ 0 & K_y & 0 \\ 0 & 0 & K_z \end{bmatrix}$$

Dans tous les procédés, il devient capital de connaître la valeur de la perméabilité K dans le sens de l'écoulement, car seul paramètre reliant la nature poreuse du milieu et l'écoulement en son sein. Il permet de donner une prédiction fiable de l'imprégnation des renforts par la résine.

Dans plusieurs procédés, l'estimation de la perméabilité peut nous permettre d'estimer la pression de la résine dans l'écoulement. Si cette pression est faible, une insuffisance de consolidation peut se produire et favoriser la formation de micros-vides/porosités comme nous allons le voir. La perméabilité est une fonction de l'architecture des fibres qui forment le réseau.

Les propriétés mécaniques du composite dépendant de la fraction volumique de fibres, il est utile d'appliquer une pression pour consolider le réseau fibreux pendant la fabrication.Quand ce réseau est comprimé, il bloque ou resserre plusieurs canaux du milieu poreux et cela réduit les possibilités d'écoulement de la résine. Cette réduction de la perméabilité avec la fraction volumique V_f doit être caractérisée.Beaucoup de modèles[3] utilisant la physique de la lubrification ou la théorie des écoulements capillaires ont été développés pour décrire la variation de la perméabilité K dans le sens de l'écoulement. La première

expression $K(V_f)$ a été développée en adaptant les modèles de capillarité de la mécanique des sols. cette adaptation est due à Carman et Kozeny [11], qui ont conclu la formulation suivante :

$$K = A_c \frac{(1 - V_f)^3}{V_f^2}$$

A_c est un paramètre empirique supposé être une fonction du réseau fibreux (car le diamètre des fibres circulaires d'origine se déforme en elliptique quand V_f varie)

Il a été montré par P. B. Nedanov et coll [12] que pour un même réseau fibreux, à différents V_f, A_c était différent. Aussi pour une couche de fibre alignée où les fibres se touchent les unes les autres, on devrait s'attendre à ce que $K \sim 0$. Le modèle de Carman et Kozeny n'est donc pas capable de saisir toute la réalité physique. Plusieurs équations ont été développées pour expliquer ces anomalies [13]. Bruschkle et Advani [13] ont utilisé la théorie de la lubrification et du modèle moléculaire pour décrire la perméabilité à travers un milieu poreux. Ils ont conclu que :

$$\frac{K}{r^2} = \frac{1}{3} \frac{(1 - L^2)^2}{L^2} \left[\frac{3Ltan^{-1}\sqrt{\frac{1+L}{1-L}}}{\sqrt{1 - L^2}} + \frac{L^2}{2} + 1 \right]^{-1}$$

$*$ avec $L = \frac{4V_f}{\pi}$
$*$ r désigne le rayon des fibres avec lesquelles le milieu poreux est constitué
Dans cette formulation, notons qu'aucun paramètre empirique ne figure. Beaucoup d'autres formulations existent. Mais dans tous les cas, la perméabilité décroît quand V_f augmente.Cette tendance est logique, car la réduction de l'espace vide entre les fibres augmente la résistance à l'écoulement fluide.Cette résistance est fonction du type de fibres et leurs arrangements.

La mesure de la perméabilité n'est pas chose facile, cependant, il existe des techniques $1D$ (K dans la direction de l'écoulement) $2D$ (K dans le plan des fibres par un écoulement radial) et $3D$ (K dans le plan des fibres et perpendiculaire au plan des fibres). Le détail des techniques de mesure peuvent être trouver dans [12, 14].

Les mesures de perméabilité pour un V_f donné ne sont pas très précises .S.G. Advani et coll. [3] estiment à 10% d'erreurs la mesure pour un même tissu dans le même laboratoire. Les résultats peuvent différer de $30 - 50\%$ d'une technique d'un laboratoire à un autre. Pour la perméabilité beaucoup de résultats expérimentaux et analytiques doivent être couplés. La difficulté d'une mesure sûre de la perméabilité vient du fait que le tissu fibreux présente deux échelles :

1. L'un de l'ordre du diamètre des fibres, c'est la double échelle $\sim$ micron

2. l'autre de l'ordre de la longueur des fibres $\sim$ millimètre c'est la simple échelle

L'idée de vouloir associer une perméabilité pour les deux types d'échelles du milieu doit être remplacée par une approche qui consiste à avoir deux perméabilités différentes pour chaque échelle [3]. L'idée d'une infiltration à simple et double échelle des renforts fibreux permet de percevoir la non-conservation de la masse. En effet l'écoulement à double échelle à l'intérieure des fibres aussi appelées écoulement in-saturation est en réalité un effet de puits qui dissipe la masse de la résine à travers les torons des fibres.

1.3.5 Paramètres influençant le mouvement de la résine

Le milieu fibreux caractérise le mouvement de la résine à travers sa perméabilité. Cependant, d'autres facteurs influencent l'écoulement de la résine

1.3.5.1 Viscosité de la résine

Comme tout fluide, la résine possède une viscosité qui traduit sa résistance propre à son écoulement. L'origine de cette viscosité est l'arrangement moléculaire du fluide. En effet l'écoulement est marqué par un frottement les unes aux autres des couches moléculaires fluides. En général la viscosité est une fonction de la température, de la pression, du taux de cisaillement fluide et du degré de cuisson. Les fluides newtoniens ont une viscosité indépendante du taux de cisaillement fluide, leur viscosité peut être interprétée comme une fonction de la température et de la cinétique de cuisson [3]. La cinétique de cuisson est la vitesse avec laquelle les chaînes courtes moléculaires des monomères se lient entre elles avec une réaction exothermique pour conduire au gel puis solidification de la résine. Nous comprenons bien que pendant la cuisson, la viscosité croît, car plus de force est nécessaire pour bouger des chaînes moléculaires plus lourdes. Avant le début de cuisson, la viscosité des résines thermodurcissables est comprise entre $100 - 500$ Centi-Poiseuil (cP) [3]. Des lois constitutives pour décrire la dépendance de la viscosité selon le degré de cuisson et la température sont nécessaires.

De manière générale, la viscosité de tout fluide newtonien décroît avec la température, mais augmente avec le degré de cuisson. Le degré de cuisson est une mesure de la cuisson de la résine (0 à l'état liquide et 1 à l'état solide). En suivant la loi d'Arrhénius, on peut écrire que la viscosité des résines thermodurcissables suit la loi suivante [15] :

$$\mu(T, \alpha) = \mu_0 e^{\frac{c_1}{c_2 T} + c_3 \alpha}$$

les c_i, $i \in \{1,2,3\}$ dépendent de la résine utilisée, et μ_0 la viscosité à une température de référence T_0. Deux phénomènes concurrentiels prennent place pour les résines thermodurcissables [15] :

1. L'un concernant l'intensification de la mobilité des molécules due à l'augmentation de la température $\Longrightarrow \mu(T, \alpha_{fixe}) \searrow$

2. L'autre concernant l'augmentation du poids moléculaire pendant la cuisson $\Longrightarrow$ $\mu(T_{fixe}, \alpha) \nearrow$

Williams-Landel-Ferry(WLF) [16]ont développé un modèle empirique pour représenter le premier phénomène.

$$ln\frac{\mu}{\mu_0} = \frac{-C_1(T-T_0)}{C_2(T-T_0)}$$

$*$ C_i, $i \in \{1,2\}$ sont des paramètres d'ajustement
$*$ T_0 est une température de référence.
Ce modèle est basé sur l'approche de volume libre dont l'une des grandes lignes est de supposer que le mouvement des molécules est intrinsèquement conditionné par le volume libre disponible dans l'ensemble moléculaire. On comprendra que moins il y a de volume libre plus les molécules vont entrer en collision les unes les autres. La quantité de mouvement est transmise donc plus rapidement. [17]. Pour prendre, en compter le second phénomène Enns et Gillham [18] ont proposé l'équation suivante :

$$ln\mu = \ln\mu_\infty + ln\overline{M}_w + \frac{E_\mu}{RT_0} - \frac{-C_1(T-T_0)}{C_2(T-T_0)}$$

$*$ μ_∞ est la viscosité lorsque la température $T \longrightarrow \infty$.
$*$ E_μ est l'énergie d'activation
$*$ $\overline{M}_w$ est la masse moléculaire moyenne
$*$ T_0 est une température arbitraire choisie pour être la température moyenne pour laquelle l'équation de Enns-Gillham est valide pour décrire la viscosité selon la température.

Il y a beaucoup de relations dans la littérature pour décrire l'évolution de la masse moléculaire moyenne comme fonction du degré de cuisson et du poids moléculaire d'un monomère [18–21]. Mais beaucoup d'auteurs [22–24] utilisent une relation semi-empirique proposée par Stolin et coll. [25] pour calculer la viscosité de la résine. Cette relation s'écrit :

$$\mu(T,\alpha) = \mu_0 e^{\frac{E_\mu}{RT}+S\alpha}$$

$*$ E_μ est l'énergie d'activation de la viscosité du fluide, supposée indépendante du degré de cuisson
$*$ R la constante des gaz

$*$ S est une constante qui prend en compte les effets de la réaction chimique, de la masse moléculaire sur la viscosité.

Une variante de la formulation précédente est aussi communément utilisée [26, 27] : :

$$\mu(T,\alpha) = A_\mu e^{\frac{E_\mu}{RT}} + \left[\frac{\alpha_g}{\alpha_g - \alpha}\right]^{a+b\alpha}$$

Les paramètres dépendent du système de résine utilisé, voir exemple du tableau 1.8.

TABLEAU 1.8 Paramètres du modèle semi-empirique de viscosité [26, 28]

Paramètre							
Auteurs	Résine	A_μ (Pa.s)	E_μ (J/mol.)	α_g	a	b	Plage de Validité
J.M Kenny et coll. [28]	résine DSM (RTM)	3.41610^{-11}	64900	0.088	3.706	-34.62	$30 - 60°C$
D.S.Kim et coll [26]	DGEBA	3.610^{-10}	58600	0.765	1	5.2	$70 - 90°C$

1.3.5.2 Cinétique de cuisson : modèle et mesures

Les propriétés finales d'un matériau composite sont fortement influencées par les conditions du processus de réticulation ou solidification de la résine. Ce dernier constitue donc l'une des étapes les plus importantes de la fabrication. Le mécanisme de polymérisation permet aux chaînes monomères de résine thermodurcissable de se lier pour former un réseau tridimensionnel solide dans lequel sont emprisonnées les fibres. Ce mécanisme peut être activé thermiquement en chauffant les courtes chaînes monomères où en additionnant un agent chimique qui provoquera la réaction de polymérisation.Le phénomène qui mène à la vitrification et solidification est généralement qualifié de cuisson. Le degré de cuisson α est proportionnel à la fraction de réseau tridimensionnel formé. Le mécanisme de polymérisation est exothermique : en effet les chaînes courtes monomères en se liant cèdent de l'énergie sous forme de chaleur. La raison principale de cette réaction exothermique est la rupture lors de liaisons monomères monomères de la double liaison carbone du monomère. Le degré de cuisson α réalise une mesure du stade de la réticulation et peut donc être mesuré par calorimétrie. α est bien une fonction du temps et de la température.

Modèle de cinétique de cuisson : Différents modèles [29–31] existent dans la littérature pour décrire à l'aide de lois simples et semi-empiriques, l'évolution du degré de cuisson selon le temps et la température. Le modèle le plus usuel [32] est le suivant :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(T)f(\alpha)$$

Cette expression découple la température et la réaction. $k(T)$ ne dépend que de la température et est défini par une loi d'Ahrrenius :

$$k(T) = Ae^{-E_\alpha/RT}$$

A correspond à la fréquence de la réaction de polymérisation et dépends donc du système de résine mise en jeu. E_α est l'énergie d'activation du système exprimée (J/mol). R est la constante des gaz parfaits ($R = 8.314 J/mol/K$).
Pour $f(\alpha)$, différents modèles sont proposés dans la littérature dont les plus communément utilisés sont :
$*$ L'un relié au degré de cuisson α à l'ordre n :

$$f(\alpha) = (1-\alpha)^n$$

Le modèle d'ordre n est généralement inadapté, car produit un flux de chaleur maximum atteint en un temps très court proche de zéro. Certains auteurs [33, 34] ont pourtant adopté ce type de modèle pour décrire la cinétique de deux formulations époxy-amine. Ils ont justifié cet usage par le fait que la formation du réseau tridimensionnel dans de telles résines se manifeste par une unique réaction.

La plupart des réactions de polymérisation se déclenchent après un certain temps, c'est alors que le modèle d'ordre n devient insuffisant pour représenter ce phénomène selon kamal et Sourour [35] car ne peut fournir le maximum de taux de réticulation pour une cuisson isotherme. Ce modèle ne peut fournir également une description quantitative exacte du taux de cuisson pour les résines époxy et polyester insaturé. Les auteurs [35] ont donc proposé un modèle auto catalytique de la réaction plus fiable.
$*$ Modèle auto catalytique de la réaction [35] :

$$f(\alpha) = (k_1 - k_2\alpha)^m(1-\alpha)^n$$

k_1, k_2 sont des constantes. m, n sont telle que $m+n$ constitue l'ordre de la réaction. Cependant, Hans et Lems [36] ont trouvé que la présence d'agents promoteurs dans les résines polyesters et quelques formulations de résines époxy accélèrent le processus de réticulation. Leurs expérimentations ont donc abouti à la disparition de k_1 de la formule auto catalytique. Ce modèle est identique à celui proposé par Piloyan et coll. [37]

$$f(\alpha) = k\alpha^m(1-\alpha)^n$$

Les paramètres k, k_1, k_2, m, n servent à calibrer les différents modèles aux expériences. La détermination de ces paramètres est d'autant plus simple dans le modèle d'ordre n que celui auto catalytique. Les paramètres n, m et k_2 sont plus complexes à trouver, seuls des techniques comme la régression linéaire ou les moindres carrés peuvent permettre leurs estimations adéquates. Certains auteurs Dutta et Ryan [38] ont réussi à représenter adéquatement la vitesse de réticulation($\frac{d\alpha}{dt}$) comme fonction du degré de cuisson (α). Ces auteurs [39] ont montré par analyse à l'état initial et maximal de réticulation, que :
$\left[\frac{\alpha}{dt}\right]_{t=0} = k_1$ et $\left[\frac{\alpha}{dt}\right]_{max} = \alpha_p$

$$m = \frac{Ln\left[\frac{\frac{\alpha_p}{(\alpha_p)^{2-m}-k_1}}{\frac{(2-m)k_1\alpha_p^{1-m}}{m-2\alpha_p}}\right]}{Ln[\alpha_p]}$$

$$k_2 = \frac{(2-m)k_1\alpha_p^{1-m}}{m-2\alpha_p}$$

Ces résultats résolus corrèlent bien avec la méthode traditionnelle de régression linéaire. La méthode de Dutta et Ryan [39] fut aussi appliquée avec succès à d'autres systèmes de résines tels les polyesters [40], vinylester [41] et époxy [42]

Un modèle numérique a été récemment formulé par Emna Ghazali [43]. Ce modèle montre une certaine adéquation du modèle de Piloyan et coll.l [37].

Mesure de la cinétique de cuisson : Le degré de cuisson mesure le stade de la réaction. Sa valeur à l'instant t de la réaction correspond au rapport entre la quantité de chaleur libérée durant le temps t et celle libérée à l'état de réticulation totale nommée H_τ. H_τ est généralement connu, car correspond à l'état de réticulation entière de la résine.

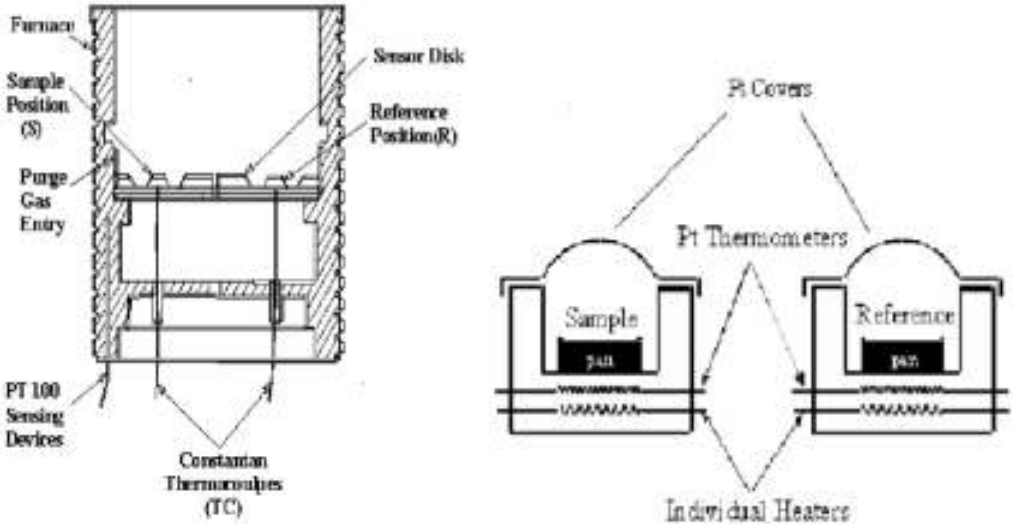
Les phénomènes exothermiques sont étudiés par calorimétrie. Il existe plusieurs types de calorimètres, cependant, très peu sont adaptés à l'étude des polymères. L'un des plus anciens à être utilisé est le DTA (Differential thermal analysis), ce dernier était conçu pour évaluer la température de transition de phase pour un matériau donné. On doit à Borschardt et Daniels [44] l'extension du DTA comme moyen de détermination des paramètres cinétiques. Cette technique nécessite la présence de deux échantillons, l'un constituant la référence (échantillon réticulé dont on connaît la quantité H_τ).Comme son nom l'indique ; le DTA effectue une différence de température entre l'échantillon et la référence. Borschardt et Daniels [44] dans leur extension ont formulé l' hypothèse de proportionnalité entre la chaleur dégagée pendant le temps t et le nombre de moles réagi.Cependant, cette technique a une très petite sensibilité(les signaux issus de changements de température causés par une transition de phase sont très faibles) [45]. Le plus standard des techniques de nos jours est basé sur la mesure de changement d'enthalpie à l'aide de la DSC (Differential Scanning Calorimetry).Il existe deux types de DSC :

∗ Une *DSC* à flux de chaleur basé sur le design de Boersma [46]
∗ Une DSC à compensation de puissance [47, 48].
La *DSC* à flux de chaleur mesure grâce à des thermocouples, la différence de température entre l'échantillon et la référence dans le temps. L'échantillon et la référence sont tous chauffés dans un même four (voir figure 1.14a). Cette différence de température est ensuite convertie en flux de chaleur calorifique.

La *DSC* à compensation de puissance utilisant des fours et thermocouples séparés (figure 1.14b), ce qui permet d'appliquer des flux de chaleur différents afin de garder la température identique entre la référence et l'échantillon. C'est la variation du flux de chaleur plus ou moins fourni à l'échantillon par rapport à la référence qui est enregistrée dans le temps. La nature du chauffage isotherme ou dynamique avec une vitesse de chauffe $\beta_T = \frac{dT}{dt}$ influence les résultats des mesures. Dans le mode dynamique, on mesure plus facilement le flux de chaleur totale H_τ et certains auteurs [49–51] ont mentionné l'indépendance pour une formulation de résine donnée, de la quantité H_τ vis-à-vis du taux de chauffe β_T.
Par contre en mode isotherme, la quantité de chaleur qui se dégage H_{iso} représente une fraction de la chaleur totale H_τ dont la partie résiduelle H_r est obtenue après une postcuisson [52]. On a donc :

$$H_\tau = H_{iso} + H_r$$

Fava [53] a constaté que la quantité $H_{iso} + H_r$ ne représentait pas vraiment H_τ c'est ainsi qu'il a attribué la quantité manquante à une perte due à la stabilisation de la température au début de l'essai isotherme. Il en ressort que les essaies dynamiques sont plus simples à réaliser que ceux isothermes, c'est la raison de leur popularité dans le milieu industriel. Cependant, plusieurs techniques existent pour obtenir à partir d'un essai dynamique les résultats d'essais isothermes. Les plus récents travaux sont dus à A. Atarsia.et R.Boukhili [54], leurs travaux ont été repris par Edu Ruiz et Catherine B. [55] dans le but de proposer une carte de conversion dynamique-isothermique d'une résine époxy. Grâce aux idées introduites par A. Atarsia.et R.Boukhili [54], on est à mesure grâce à un balayage dynamique par *DSC* à pentes β_T variables, de reconstituer l'évolution du degré de cuisson pour une isotherme donnée, et donc pour n'importe quel cycle de cuisson.



(a) *DSC* à flux de chaleur [56] (b) *DSC* à compensation de puissance [47]

FIGURE 1.14 Principes des *DSC* à flux de chaleur et à compensation de puissance

1.3.5.3 Contrainte dans les fibres

La contrainte dans les fibres influence l'écoulement de la résine lors de la fabrication, à travers la perméabilité K du réseau fibreux. Il y'a une relation entre la contrainte dans les fibres et le taux volumique de fibre. Intuitivement une compression transversale dans le cas d'un moulage, renforce le contact fibre-fibre en réduisant les interstices. Une contrainte axiale peut aussi être appliquée, c'est le cas des procédés utilisant les préimprégnés comme l'AFP en aéronautique, une tension dans les fibres permet d'augmenter la fraction volumique de fibre V_f en réduisant la perméabilité.

Le réseau fibreux est traité comme un milieu continu, car la section d'une fibre est très inférieure aux dimensions du composite. Comme le dénote [57] grâce à la mécanique des sols de Terzaghi [58], la contrainte appliquée aux réseaux fibreux durant la fabrication est supportée par les fibres d'une part et la résine de l'autre.

$$\sigma_{\text{appliquée}} = \sigma_{\text{fibres}} + P_{\text{résine}}$$

La contrainte appliquée $\sigma_{\text{appliquée}}$ est toujours négative, car il s'agit d'une compression. Plusieurs expressions existent dans la littérature [59–61] pour relier σ_{fibres} au changement de V_f. Nous retiendrons celles dues à Gutowski [62].
Dans le cas d'une tension des fibres, Gutowski [62] a proposé une relation non linéaire entre la force et la fraction volumique des fibres.Cette relation s'écrit donc

$$\sigma_{11} = \frac{A_0 V_0}{V_f} \frac{1 - \sqrt{\frac{V_f}{V_0}}}{\frac{16}{\pi^3}\frac{\beta_\sigma^2}{E}\sqrt{\frac{V_a}{V_f}}\left[\frac{V_a}{V_f} - 1\right]^3}$$

∗ E est le module du réseau fibreux
∗ V_0 est la fraction volumique de fibre sous aucune contrainte
∗V_a est la fraction volumique maximale atteignable, il dépend du procédé et du tissu.
∗ A_0 est la section initiale d'application de la contrainte
∗ β_σ est un paramètre à trouver expérimentalement en calant le modèle sur des expériences à différents V_f
Dans le cas d'une pression transversale comme le cas des procédés en autoclave, LCM, Gutowski [62] a proposé la forme suivante de la contrainte σ_{zz} dans les fibres :

$$\sigma_{zz} = \frac{3\pi E}{\beta_\sigma^4} \frac{1 - \sqrt{\frac{V_f}{V_0}}}{\left[\sqrt{\frac{V_f}{V_0}}\right]^4} = A_g \frac{1 - \sqrt{\frac{V_f}{V_0}}}{\left[\sqrt{\frac{V_f}{V_0}}\right]^4}$$

avec A_g dépendant de la nature du réseau fibreux.
Il faut noter que la formulation de Gutowski [57, 62] pour les deux types de contraintes dans le réseau fibreux est basée sur la mécanique des milieux continus, en supposant un contact multiple entre eux et en négligeant les ondulations.

1.3.5.4 Cycle de cuisson :

Le cycle de cuisson est l'un des éléments majeurs dans la fabrication des composites, surtout dans les procédés en autoclave. Nous avons déjà mentionné que le comportement chimiorhéologique de la résine est régi par la température.La qualité de la pièce est régie entre autres par le processus de compactage qui consiste à appliquer un cycle de pression en même temps que celui de la température.

Pour une cuisson parfaite, trois conditions doivent être réunies :
∗ Une consolidation parfaite du composite par le biais de la pression qui doit être appliquée au stade de viscosité minimum pour chasser l'excès de résine.Ce qui contribuera à augmenter le V_f et diminuer les porosités
∗ La résine doit être parfaitement cuite, cela signifie un degré de cuisson proche de 1, la réaction de cuisson est exothermique, et donc peut causer des dégradations thermiques [8] dans le matériau lors de la fabrication
∗ Le temps de cuisson doit être minimal à cause des coûts de l'autoclave, le gain de temps entraîne un bénéfice non négligeable dans les productions de masse.

Généralement, un cycle de Température conventionnel est donné par le fabricant de la résine, c'est un cycle standard basé sur de larges expériences visant à permettre une assez bonne cuisson, mais non optimal, car,ce cycle prend en compte toutes les situations (

8. Dégradation d'autant plus significative que le matériau est épais

dégradations thermiques, fraction volumique de fibres moyenne, taux de vide moyen ect.) Un exemple de cycle standard de cuisson de la résine EPON 862/W est présenté à la figure 1.15

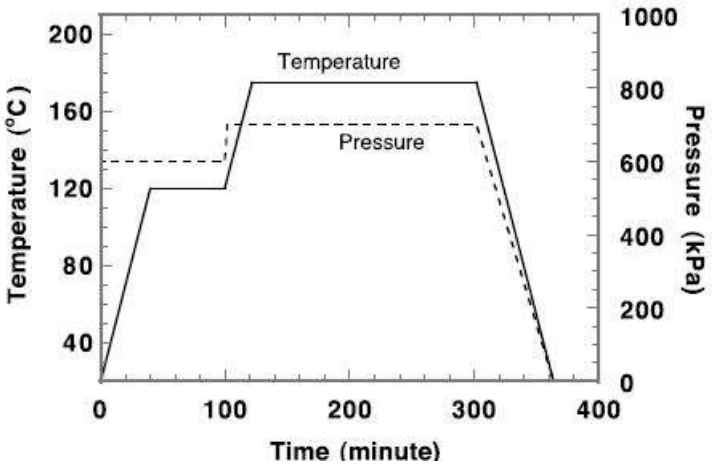


FIGURE 1.15 Exemple de cycle standard de cuisson de l'époxy EPON 862/W [63]

La détermination et l'optimisation des cycles furent pour la plupart basées sur des essaies expérimentaux, cependant, ces approches empiriques sont limitées par le matériau, et la géométrie du composite [64]. Beaucoup d'autres approches ont été développées pour obtenir un cycle optimal en temps, comme les abaques de G. Mychajluk [65] pour le procédé RTM, les diagrammes d'optimisation de P. Olivier [66] et les simulations par réseau de neurones de N. Rai [67]. Ces différentes méthodes permettent d'apprécier l'évolution de la cinétique de cuisson, et contrôler la cuisson parfaite de la résine, mais surtout en un temps optimal de fabrication. Cependant, il est crucial que cet optimum de fabrication en temps puisse satisfaire à la fois les propriétés mécaniques attendues du matériau, notamment sa fraction volumique de fibre V_f, micros défauts. En effet durant la fabrication, des micros défauts prennent place dans la pièce finale, ce sont généralement :

* des zones riches en résines
* des zones sèches (fibres sans résines)
* des poches de vide ou porosité dans le composite

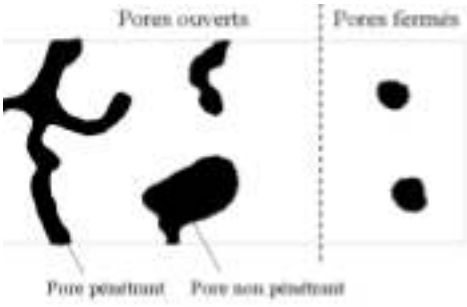
Ces micros défauts sont fonction du procédé.Comme nous allons le voir dans la section suivante, les porosités sont influencées par la pression d'écoulement de la résine lors de la fabrication

1.4 Porosités au cours des processus de fabrication

Une porosité est définie comme étant la propriété d'un milieu ayant des vides interstitiels.Cette définition est applicable au milieu poreux et aux matériaux également. Dans le

cas des matériaux composites, il s'agit de très petites cavités de l'ordre du millimètre et moins, contenant du gaz.

Schoeller [68] a défini deux types de porosité (figure 1.16a)
∗ L'une ouverte, formée de vides communicants entre partie interne et externe du matériau
∗ L'autre fermée, isolée dans le matériau
Schoeller a aussi classé les pores par leurs tailles, en se servant de la taille moyenne d'interstices du milieu poreux et des états physiques de l'eau (voir figure 1.16b) .



Rayon des pores	Classe	Etat de l'eau
< 0,1 µm	Microporosité	Eau de rétention exclusivement
0,1 à 2500 µm	Mésoporosité	Eau capilaire et eau gravitaire
> 2500 µm	Macroporosité	Eau gravitaire dominante

(a) Classification des porosités par type (b) Classification des porosités par taille

FIGURE 1.16 Classification des pores [68]

1.4.1 Causes possibles de la formation de porosités

Deux causes principales sont à l'origine de la création de porosité dans les composites :
∗ L'une mécanique due à l'écoulement qui suivant sa nature peut emprisonner de l'air ou du gaz dans de micros ou macros cavités constituantes des micros ou macros porosités.
∗ L'autre thermodynamique, due à la pression et la température, qui sous certaines conditions provoquent l'apparition de bulles dans le liquide. Bulles qui constitueront plus tard des porosités dans le matériau.

1.4.1.1 Causes mécaniques

Les causes mécaniques sont dues principalement à l'écoulement et la phase de drapage

L'écoulement : les études expérimentales d'E. Ruiz et coll. [69] ont montré que la vitesse du front de la résine lors de la fabrication peut provoquer la formation de vide pour la majeure partie des procédés LCM, surtout lorsque l'écoulement est dans le plan des fibres.

Une analyse des résultats de E. Ruiz et coll.(figure 1.17) montre deux phénomènes suivant la vitesse d'imprégnation des renforts fibreux :

∗ À faible vitesse, les forces capillaires l'emportent sur les forces visqueuses, ce qui entraîne une infiltration du liquide dans les renforts entre les torons des fibres, on parle de renforts saturés. Cela entraînant la création de macros vides entre les fibres

∗ À l'inverse avec une grande vitesse d'imprégnation, les forces visqueuses sont prédominantes, ce qui contribue à l'imprégnation de l'enveloppe des renforts, sans imprégnation totale des torons à l'intérieur, on parle de renforts insaturés. Ceci entraîne la création de micros vides dans les fibres.

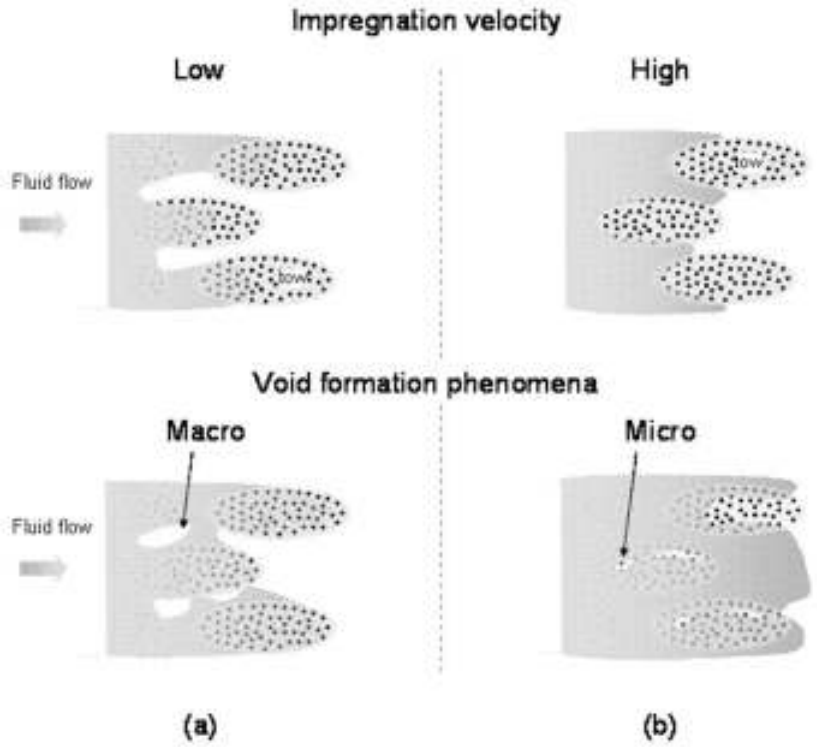


FIGURE 1.17 (a)Macros vides causés par la capillarité (b) Micros vides causés par la viscosité, [69]

La capillarité est un phénomène qui dépend de la nature des fibres. Elle semble importante pour la formation de vides (micros et macros).Leclerc [70] a proposé d'évaluer la distribution de vide avec un nombre dimensionnel C_a^* appelée nombre capillaire modifié qui se défini comme étant le rapport entre force visqueuse et forces capillaires au front de progression du fluide.

$$C_a^* = \frac{v_\phi \mu}{\gamma_{FR} \cos\theta}$$

v_ϕ est la vitesse de front de résine, θ est l'angle de contact entre fibre et résine et γ_{FR} est la tension superficielle fibre- résine. Certains auteurs [71, 72] ont formulé grâce à des études expérimentales une évolution logarithmique entre la distribution de vide ϵ et le nombre capillaire. Un modèle de ce type a été formulé par Leclerc et Ruiz [70] pour les procédés RTM.Le graphe 1.18 montre une corrélation entre le nombre capillaire et le taux de vide

ϵ. L'allure de ce graphe peut être analysée comme suit : tout d'abord on observe un taux

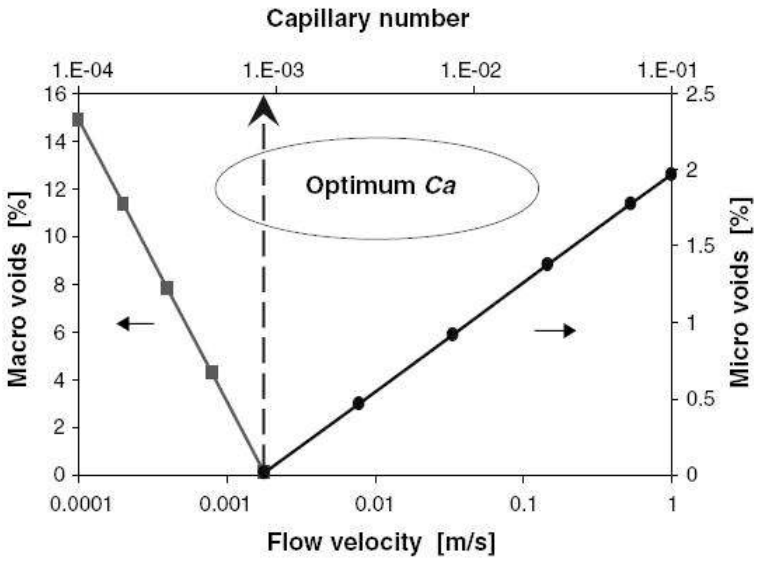


FIGURE 1.18 Taux de vide ϵ en fonction C_a^* en procédé RTM [70]

de vide qui décroît avec l'augmentation du nombre capillaire puis se met à croître à partir d'un nombre capillaire donné.Les vitesses de front faible de résine (nombre capillaire faible) sont représentées par la courbe décroissante à gauche, et celle croissante à droite correspond aux grandes vitesses de front(nombre capillaire élevé). Le nombre capillaire faible est pouponnière de macros-vides tandis qu'un fort nombre capillaire engendre des micros-vides. L'intersection des deux tendances correspond en théorie à la plage d'écoulement qui permet de minimiser la formation de vides

Le drapage : d'autre part la phase de drapage peut également être responsable de macros-vides dans l'écoulement, cela concerne beaucoup plus le drapage automatisé type AFP, en effet les gaps et over-lapes [6] créent des micros cavités qui peuvent évoluer vers des porosités. Le drapage par AFP idéale nécessite l'adhésion des plis entre eux, et une bonne consolidation. C'est alors que la vitesse de dépose, la température de chauffe, la pression appliquée ainsi que l'état du rouleau (rayon, nombre de têtes de dépose, etc.) sont les paramètres à optimiser pour éviter la présence de porosités, dans la pièce finale en procédé AFP.

Autres causes possibles : les porosités peuvent être dues au dépôt d'impuretés (poussière, cheveux etc.) au cours de sa mise en forme. Cette dernière cause est moins fréquente, car comme nous l'avons vu, les salles blanches ont été élaborées pour pallier ce problème.

1.4.1.2 Causes thermodynamiques

Les causes majeures de porosités dans la plupart des procédés restent thermodynamiques. En effet, la température et la pression jouent des rôles très importants dans le procédé de formation, transport de vide durant la fabrication.

Processus de création ou nucléation, et Dissolution : la diffusion moléculaire de gaz dans la résine est régie par la pression et la température. Ces molécules finissent par former un agglomérat suffisant pour créer une bulle. Kingery [73] a estimé entre 50 et 100 molécules pour une espèce chimique à faible masse molaire en se basant sur l'eau. La formation d'une bulle nécessite la création d'un volume et d'une surface. Cela met en évidence deux jeux d'énergies opposées :
∗ L'une de volume dû à la saturation du gaz dans le liquide
∗ L'autre de surface qui résiste à la croissance de la bulle afin de minimiser l'énergie de surface.
Si la bulle est supposée de forme sphérique et de rayon R_p
L'enthalpie libre ΔG s'exprime de la sorte :

$$\Delta G = \frac{\pi R_p^3}{3V_m} k_b ln\beta_g + 4\pi R_p^2 \gamma_{LV}$$

k_b désigne la constante de Boltzmann, T la température du milieu V_m le volume d'une molécule de gaz dans la bulle et γ_{LV} la tension superficielle entre liquide(résine) et gaz. β_g représente le degré de saturation du gaz dans la résine, il peut s'exprimer comme le rapport entre la pression du liquide et celui du gaz [74]. Le premier terme représente l'énergie de volume, on peut observer que dans le cas d'une dépression, β_g augmente et ΔG diminue, ce qui crée une condition favorable à l'apparition de bulles.
Le second terme représente l'énergie de surface. Comme le montre le graphique 1.19 de Veesler, l'avenir de la bulle dépend de ces deux types d'énergies. Il existe un rayon critique R_p^* avec laquelle la bulle est instable, il s'agit du rayon de Gibbs-Thomson-Freundlish

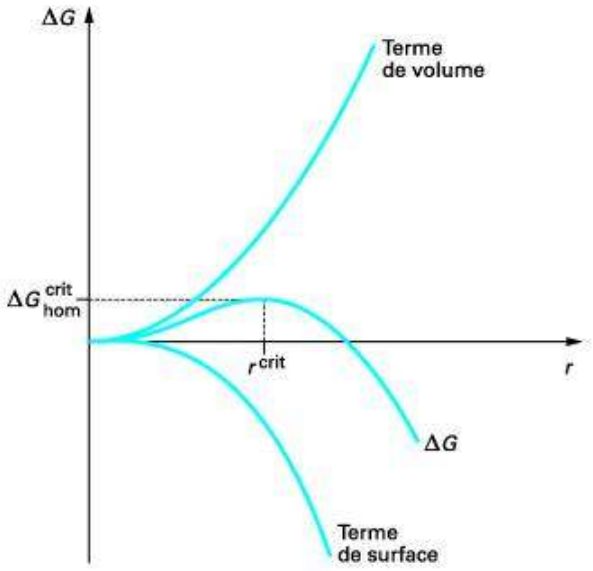


FIGURE 1.19 Enthalpie et formation de bulles d'air [75]

$$R_p^* = \frac{2V_m\gamma_{LV}}{kTln\beta_g}$$

R_p^* correspond à $\Delta G_{max} = \frac{4}{3}\pi R_p^{*2}\gamma_{LV}$ (voir figure 1.19).

$$\begin{cases} R_p < R_p^* \Longrightarrow \text{la bulle est dissoute} \\ R_p > R_p^* \Longrightarrow \text{la bulle croît} \end{cases}$$

Stabilisation : une fois la bulle créée au sein du fluide, elle peut soit se stabiliser ou être dissoute suivant l'équilibre de pression qui règne entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle.En effet Bruchon [76] a démontré que la stabilité de la bulle est effective si la pression externe qui tend à minimiser l'énergie de surface de la bulle est compensée par la pression interne. Il en ressort une loi très simple :

$$P_{gaz} - P_{rsine} = 2\frac{\gamma_{LV}}{R_p}$$

.

Phénomènes Thermo-Diffusif : à l'état non statique de température et de pression, aucun équilibre permanent de bulle ne peut exister. Kardos et coll. [57, 77, 78] ont développé un modèle pour l'évolution des bulles dans la résine. Ces auteurs [57, 77, 78] ont montré que le grossissement des bulles à une température donnée ne peut se produire si la pression dans la bulle est plus grande que celle de la vapeur d'eau à cette température. nous allons présenter sommairement leur modèle. On en tire une relation entre la pression et la température pour éviter la propagation de vide. On suppose qu'initialement la bulle

contient un gaz formé de mélange d'air et d'eau. L'eau proviendrait de la vapeur d'eau formée par une élévation de la température. P_{gaz} dans la bulle est :

$$P_{gaz} = P_{air} + P_{eau}$$

Le composé air + eau est considéré comme un gaz idéal, on peut utiliser la loi de Raoult pour calculer P_{eau} comme une fonction de la fraction molaire d'eau X_{eau} dans la bulle .

$$P_{eau} = X_{eau} P_{gaz}$$

On définit la pression de vapeur saturante P_{vapeur} par la relation de Clausius-Clapeyron.

$$P_{vapeur} = \left[P_{ebullition} e^{\left[\frac{L}{RT^{ebullition}}\right]} \right] e^{\left[\frac{-L}{RT}\right]}$$

$*$ $P_{ebullition}$ est la pression de l'eau à l'ébullition et vaut $10^5 Pa$
$*$ $T^{ebullition}$ est la température d'ébullition de l'eau et vaut $373K$
$*$ R est la constante des gaz parfait et vaut $8.305 Jmol^{-1}K^{-1}$
$*$ L est la chaleur latente de vaporisation et vaut $40626 Jmol^{-1}$
En supposant que la chaleur latente L reste constant lors du processus on peut réécrire que :

$$P_{vapeur} = 4.96210^{-5} e^{-\frac{4892}{T}}$$

La concentration d'eau dans la résine C_{rsine} dépend de sa densité volumique ρ_r, de sa fraction massique W_r et de son humidité RH

$$C_{rsine} = k \frac{RH^2 \rho_r}{100 W_r}$$

k est un paramètre qui prend en compte les molécules libres en eau qui peuvent diffuser au sein des agrégats moléculaires de la résine. Il dépend des conditions industrielles et sa valeur a été estimée à 90% [79]. la concentration d'eau lors de la fabrication dans la résine ne dépend que des conditions initiales donc de l'humidité initiale RH_0

$$C_{rsine} = C_\infty = \frac{RH_0^2 \rho_r}{100 W_r}$$

L' humidité est contrôlée en environnement industriel, et vaut dans le pire des cas 60%. C_{sat} est la concentration d'eau à la surface de la bulle, il est plus difficile à trouver à cause de la variation de l'humidité. En définissant C_{sat} comme celle de la résine et l'humidité $SH = 100 \frac{P_{eau}}{P_{vapeur}}$ il s'en suit donc :

$$C_{sat} = k \frac{\rho_r}{100 W_r} * \left[100 \frac{P_{eau}}{P_{vapeur}} \right]^2$$

$$C_{sat} = k\frac{\rho_r}{100W_r} * \left[100\frac{X_{eau}0P_{gaz}}{4.96210^{-5}e^{-\frac{4892}{T}}}\right]^2$$

En tenant compte de la stabilité de la bulle, on a :

$$C_{sat} = k\frac{\rho_r}{100W_r} * \left[100\frac{X_{eau}\left[P_{rsine} + 2\frac{\gamma_{LV}}{R_p}\right]}{4.96210^{-5}e^{-\frac{4892}{T}}}\right]^2$$

Kardos et coll. [77, 78] en se basant sur la diffusion de la vapeur d'eau, on conclut que le rayon $R_p(t)$ de la porosité varie proportionnellement à la racine carrée du temps t :

$$R_p(t) = 4B[D(T)t]^{1/2}$$

$D(T)$ est le coefficient de diffusion de l'eau qui dépend de la température et est régi par la loi de Fick [9]
B est la force de croissance de diffusion et dépend de C_{sat} et de C_∞

$$B = \frac{(C_\infty - C_{sat})}{\rho_r}$$

Kardos et coll. [77] ont déduit que pour prévenir la croissance des bulles par diffusion, il faut que la pression dans la bulle soit plus grande que celle de la vapeur saturée, cela s'exprime par :

$$B < 0 \Longrightarrow C_\infty < C_{sat}$$

Cette condition permet donc aux porosités de croître plus lentement pour finir par se dissoudre.

Phénomènes Thermo-Mécanique : des causes thermomécaniques peuvent influencer l'évolution d'une porosité dans la résine.

- P_{imp} désigne la pression imposée au système
- P_g est la pression du gaz à l'intérieur
- R_p est le rayon de la porosité
- γ_{LV} Tension superficielle liquide vapeur

En absence de toutes forces volumiques, l'équation d'équilibre locale s'écrit en mécanique :

$$div(\sigma) = 0 \Longrightarrow \frac{\sigma_{rr}}{dr} + \frac{1}{r}(\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}) = 0$$

9. $D(T) = D_0 e^{\frac{E_a}{RT}}$ E_a énergie d'activation, D_0 constant du liquide, T température en $°K$

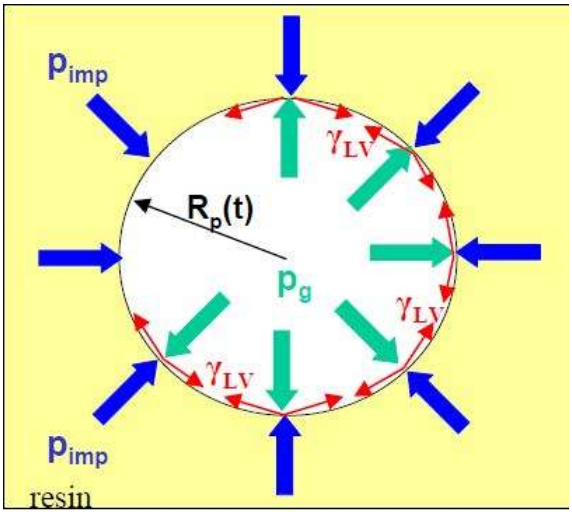


FIGURE 1.20 [Modèle d'une porosité dans la résine [79]

la cinétique de déformation de la porosité [76] est :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}} = \frac{\dot{R}_p R_p^2}{r^3} \begin{pmatrix} -2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Le tenseur visqueux de Cauchy s'écrit :

$$\underline{\underline{\sigma}} = 2\eta(T,\alpha)\underline{\underline{\dot{\epsilon}}} - p\underline{\underline{I}}$$

$$\begin{cases} \sigma_{rr}(R) + P_g = \frac{2\gamma_{LV}}{R_p}\ ^a \\ \sigma_{rr}(+\infty) = -P_{imp} \end{cases}$$

a. Équation d'équilibre de Laplace-Young

Si la porosité renferme un gaz parfait, on a :

$$P_g(t) = P_0 \frac{T(t)}{T_0} \left[\frac{R_{p0}}{R_p(t)}\right]^3$$

La cinétique thermomécanique de la porosité sera donc

$$\frac{\dot{R}_p}{R_p(t)} = \frac{P_0 \frac{T(t)}{T_0} \left[\frac{R_{p0}}{R_p(t)}\right]^3 - P_{imp}(t)}{\eta(T,\alpha)} - \frac{\gamma_{LV}}{2\eta(T,\alpha)R_p(t)}$$

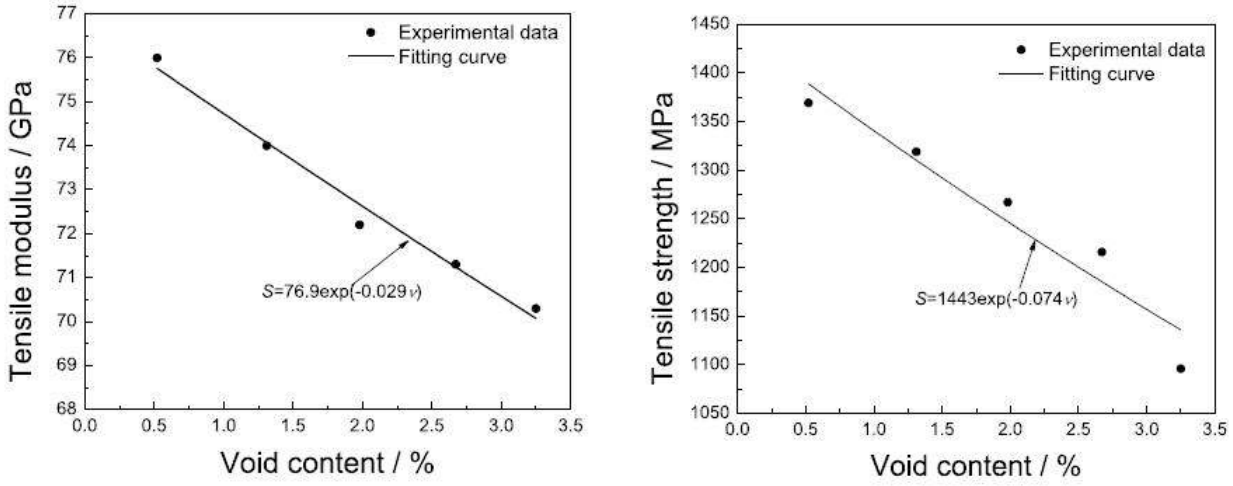
1.4.2 Influence des porosités sur les propriétés mécaniques du composite

Intuitivement les bulles qui conduisent aux porosités dans les composites vont contribuer à diminuer leurs propriétés mécaniques.
La présence de porosités affecte particulièrement la matrice qui ne peut plus jouer son rôle de transfert de charge. Les auteurs [80–83] ont montré expérimentalement que les propriétés mécaniques telles que le module de flexion, de compression et l'ILLS(InterLaminar Shear Stress) sont largement affectées . Une formulation semi-empirique de la baisse des propriétés mécaniques est due à Ghiorse [84]. Cette formulation suppose que la propriété mécanique S d'un matériau avec un taux volumique de porosité ϵ est reliée à sa propriété théorique sans porosités S_0 de la sorte :

$$S = S_0 e^{-b\epsilon}$$

où b est une constante empirique dépendant des dimensions, de l'orientation des porosités et des propriétés du matériau. Les travaux de Ling LIU [83] ont montré (cf figures 1.21 1.22) une corrélation entre la chute de propriétés mécaniques due au taux de vides/porosités et la formulation de Ghiorse [84]. Ces travaux [83] ont également confirmé certaines prédictions [80] que l'ILLS est la propriété mécanique la plus affectée par les porosités , elle présente une réduction moyenne de l'ordre de 6% par unité volumique de taux de porosité ϵ pour des stratifiés carbone/époxy.
Les auteurs [80–83] ont également observé expérimentalement que les porosités provoquent une baisse de la durée de vie en fatigue du matériau. Cependant, les auteurs [80–83] s'accordent tous qu'entre 0.5%[10] et 1%, le taux volumique de porosité, ϵ n'a aucun effet sur les propriétés mécaniques . Il est donc crucial d'avoir ϵ le plus faible possible.

10. Il est difficile, voir impossible de descendre en dessous de cette valeur



(a) Évolution du module de traction avec le taux de vide(b) Évolution de la contrainte de traction avec le taux de vide

FIGURE 1.21 Validation de la loi de Ghiorse [83] :cas de la traction

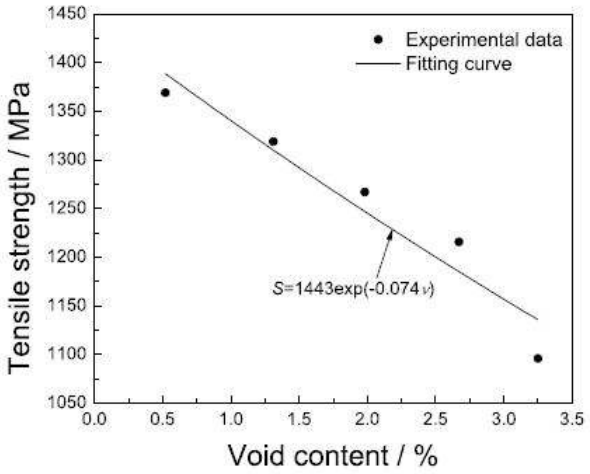


FIGURE 1.22 Validation de la loi de Ghiorse [83] :cas de l'ILLS

.

1.4.3 États de l'art sur l'optimisation des porosités par le cycle

Les études de [85, 86] ont traduit l'existence d'une plage de temps/température idéale à l'application de la pression (figure 1.23). Cette plage se situerait à quelques degrés près, entre la température favorisant l'évaporation de matières volatiles(déterminée par TGA (thermogravity analysis)) et avant la réticulation de la résine. Dans cette zone particulière, la viscosité est proche du minimum. Boey et coll. [87] ont étudié l'influence de la pression de vide sur les porosités, dans le cas du procédé de moulage au contact et il en ressort deux observations capitales liées à la pression du vide (figure 1.24) :

∗ L'augmentation de la pression de vide contribue à augmenter le taux de vide dans la pièce par l'extraction de matières volatiles qui finissent emprisonnées dans le fluide (cf. fig. 1.24a).
∗ L'augmentation de la pression de vide permet aussi la décroissance des bulles(cf. fig. 1.24b). En effet la pression d'écoulement de la résine devient plus grande, il en résulte une augmentation de C_{sat} et d'après les développements théoriques de Kardos [77, 78], la force de croissance de diffusion se mettra a décroître, ce qui entraînera une réduction volumique de la taille des porosités.

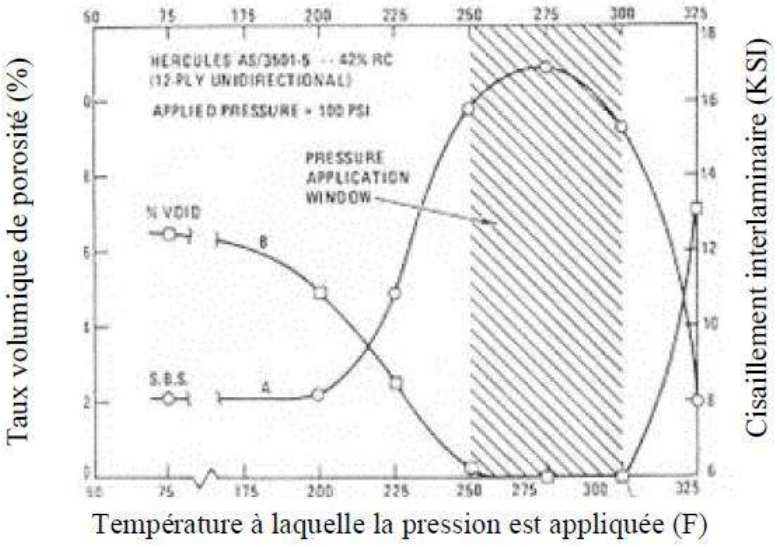
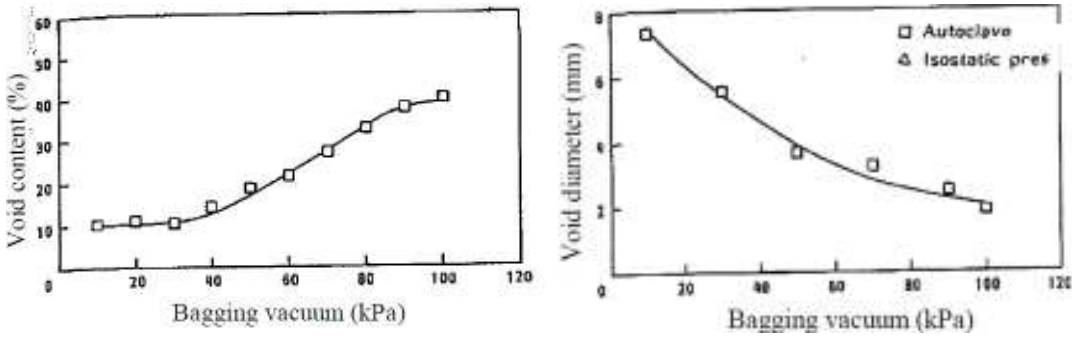


FIGURE 1.23 plage optimale d'application de la pression hydrostatique [85]

.



(a) Pression de vide et taux de vide (b) Pression de vide et taille de porosités

FIGURE 1.24 Pression de vide et évolution de porosités [87]

.

Chapitre 2

PROCEDURE EXPERIMENTALE

Dans cette section, nous allons exposer l'ensemble des tests et expériences réalisés. Deux grands volets sont à distinguer :

∗ Le premier concerne la fabrication de panneaux rectangulaires par procédé RFI.

∗ Le second concerne la caractérisation des propriétés physiques des panneaux fabriqués.

2.1 Matériaux utilisés

Le matériau utilisé est un composite carbone époxy. Les fibres de carbone sont de type NCF [1] produit par Saertex [2] et la résine est de type époxy produit par Cytec [3]. Les propriétés des tissus NCF et de la résine sont illustrées respectivement sur les tableaux 2.1 et 2.2.Des panneaux de dimension 31.75x263.5cm^2 (12.5″x25″) sont fabriqués. De ces panneaux sont découpés des échantillons de 2.54x2.54cm^2 (1″x1″) à l'aide d'une scie diamantée refroidie par de l'eau. La découpe aurait pu être à sec à cause de l'absorption d'eau mais aurait entraîner des dommages sur le système de découpe

Tableau 2.1 Propriétés du tissu NCF de carbone

Propriétés des fibres de carbone	
Masse surfacique Aw g/m^2	534
Masse Volumique ρ_f g/cm^3	1.78
Orientation	bidiagonale $+45°/-45°$

Tableau 2.2 Propriétés de la résine époxy

Propriétés de la résine	
T_g $°C$	212
Masse volumique ρ_r g/cm^3	1.31
Viscosité	Figure2.1
Durée de vie	1ans à $-18°$

1. Tissu non ondulé et Non-Crimp Fabrics en anglais
2. Site Saertex
3. Site Cytec

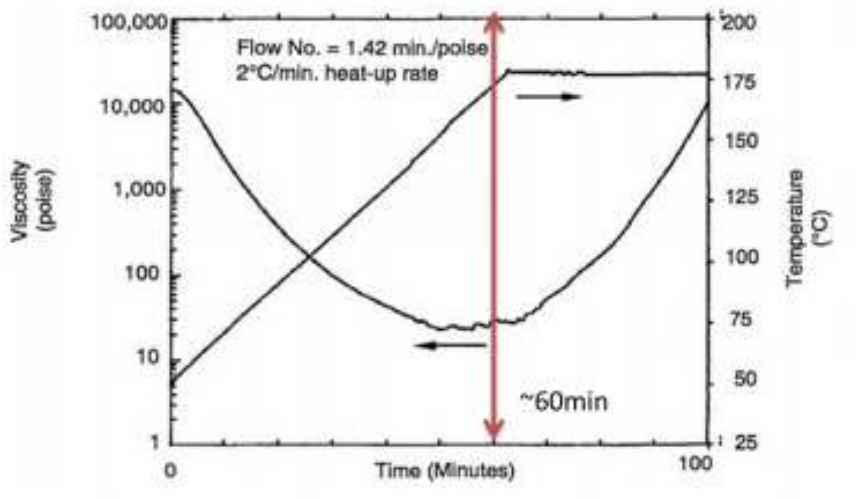


FIGURE 2.1 Courbe de viscosité indiquée dans la fiche technique de Cyctec[88]

2.2 Procédure de fabrication

Nous avons entrepris la fabrication de panneaux rectangulaires par procédé RFI, le but étant d'atteindre un taux de fibre moyen maximal de $V_f = 60\% \pm 2\%$ en minimisant le taux de vide global et local. Le tableau2.3 résume les conditions générales de fabrication

TABLEAU 2.3 Conditions de fabrication

Conditions générales de fabrication	
Dimensions plaques	31.75x26.5cm^2
Tissus NCF bidiagonal	6$\longrightarrow$12plis à $+45°/-45°$
Propriétés	symétrique/ équilibré
taux de fibres V_f	60%

2.2.1 Calculs préliminaires théoriques basés sur les conditions générales de fabrication

Ayant fixé les conditions de fabrication, notamment le nombre de couches NCF et le taux volumique de fibres V_f ainsi que les dimensions de la plaque, il faut à présent calculer la masse de résine à infuser. Le tableau2.4 propose un cheminement de calcul de la masse de résine à infuser.

TABLEAU 2.4 Calculs préliminaires théoriques selon les conditions générales de fabrication

Calculs préliminaires théoriques selon les conditions générales de fabrication		
Propriété	Formule	Valeur numérique
Surface plaque S_p	Lx l	$0.2016m^2$
Masse des fibres m_f	nxAwxS_f n=6plis	$650g$
Masse volumique composite ρ_c	$V_f * \rho_f + (1 - V_f) * \rho_r$	$1.59g/cm^3$
Volume occupé par les fibres Vol_f	$\frac{m_f}{\rho_f}$	$364.94cm^3$
Volume total du composite Vol_c	$\frac{Vol_f}{V_f}$	$608.24cm^3$
Volume occupé par la résine Vol_r	Vol_c-Vol_f	$243.29cm^3$
Masse de résine théorique à infuser m_{rth}	Vol_rxρ_r	$\sim 318.72g$
Masse de résine pratique [a] m_r	m_{rth}+15%m_{rth}	$\sim 366.5280g$
Épaisseur théorique h_{th}	$\frac{Vol_c}{S_p}$ ou $\frac{Aw*n}{V_f*\rho_f}$	$3mm$

a. ceci tient compte d'une perte de résine évaluée à 15%

Deux couches de résine de 31.75x263.5cm^2 (12.5″x25″) sont requises pour 6 plis NCF. Les dimensions ont été convenablement choisies pour éviter des overlaps de résine afin de respecter la masse à infuser

2.2.2 Étapes de la fabrication des panneaux

On peut dénombrer cinq grandes étapes dans le procédé RFI :

⋆ La découpe et pesée des fibres/films de résine

⋆ Le drapage

⋆ Ensachage

⋆ Cuisson (cycle de température et de pression)

⋆ Démoulage

2.2.2.1 Découpe et pesée des fibres et du film de la résine

La phase de découpe correspond à la découpe des fibres et du film de résine à la forme rectangulaire de dimensions 31.75x263.5cm^2 (12.5″x25″)

Les quantités découpées sont ensuite pesées.

∗ La découpe des fibres (cf. figure 2.2a)

Pour la découpe des fibres, un masque de protection est nécessaire en raison de la nocivité du carbone.

∗ La découpe du film de résine (cf. figure 2.2b)

Le rouleau de film de résine doit au préalable être sorti du congélateur $6 - 7h$ avant la découpe. Il faut noter que deux couches de résine de 31.75x263.5cm^2 (12.5″x25″) sont requises pour 6 plis NCF.

(a) Mode opératoire de la découpe fibres

(b) Mode opératoire de la découpe du film de résine

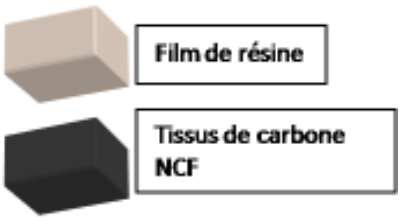
FIGURE 2.2 Mode opératoire de la fabrication : découpe de fibres/ films de résine

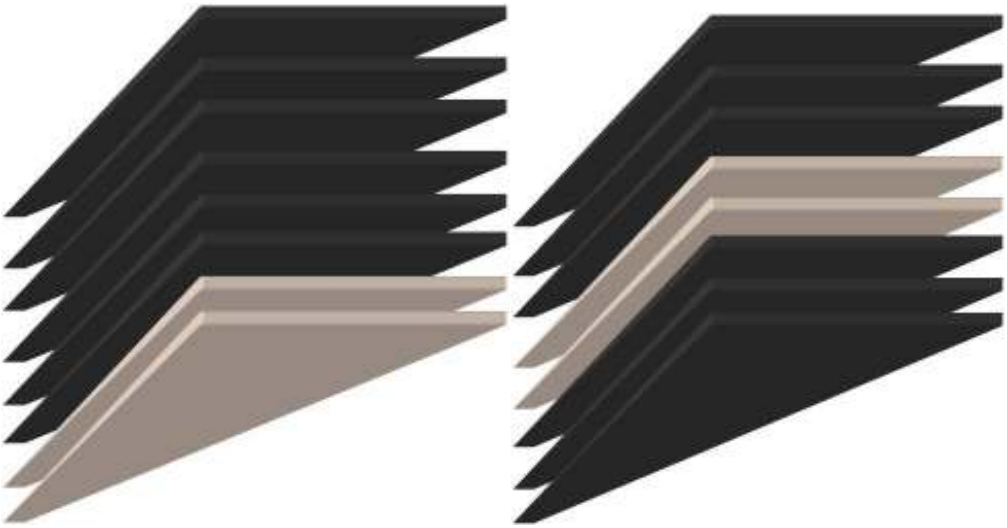
2.2.2.2 Drapage

Dans ce travail nous avons distingué deux modes de drapage :

∗ Les modes primaires

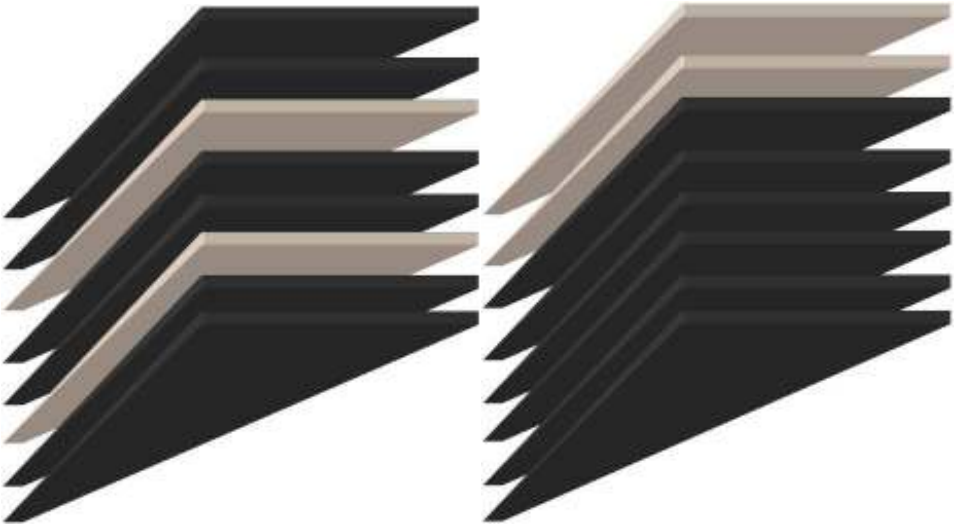
Les modes primaires concernent la répartition du film de résine dans le stratifié. Nous avons testé quatre modes primaires de drapage illustrés par les figures 2.3 et 2.4 .





(a) Mode primaire de drapage A (b) Mode primaire de drapage B

FIGURE 2.3 drapage : Modes primaires de drapage A et B



(a) Mode primaire de drapage C (b) Mode primaire de drapage D

FIGURE 2.4 drapage : Modes primaires de drapage C et D

∗ Les modes secondaires

Les modes secondaires concernent la répartition du film de résine dans le plan du laminé : la masse totale à infuser et la surface de la résine restent conservées, seule la façon de la disposer dans le plan du drapage est discontinue avec la présence de gaps et d'overlaps de résine.La série de gaps et d'overlaps effectuée sur le laminé est représentée sur la figure 2.5 . Deux modes secondaires seront testés, tous basés sur un mode primaire A. Le premier AA contient une série de gaps/ overlaps inférieure à $2.54cm$ $(1'')$. Pour le second, AB ces gaps/overlaps s'étendent entre $2.54 - 6.45cm$ $(1'' - 2.5'')$

FIGURE 2.5 Modes secondaires : position de gaps et d'overlaps dans le laminé

2.2.2.3 Ensachage

Le composite ainsi drapé est placé sur une plaque d'aluminium (moule) préalablement recouvert de téflon.Le tout est recouvert de release film, breather et d'un sac de cuisson (voir figure 2.6).

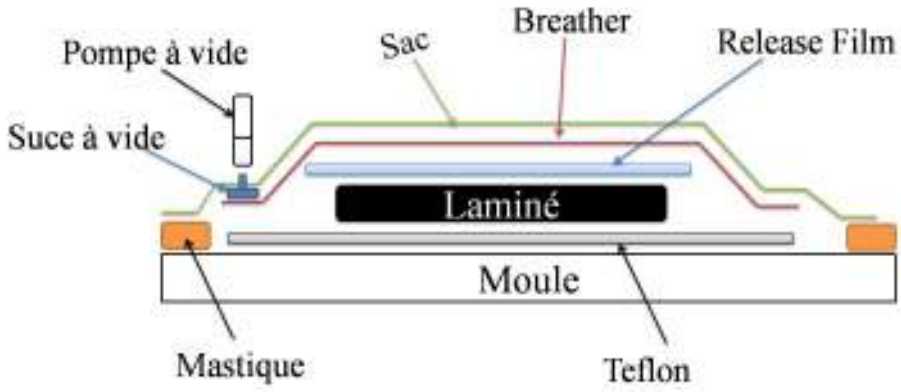


FIGURE 2.6 Composants d'ensachage

Le rôle de chaque composant d'ensachage est illustré dans le tableau 2.5

2.2.2.4 Cuisson dans l'autoclave

Nous avons utilisé au départ un cycle de température basique recommandé par l'industriel Cytec (voir figure 2.7). Ce cycle consiste à cuire à $180°C$ $(355°F)$ pendant $3h$ avec une pente de monté/ descente inférieure à $3°C/minute$. La pression est appliquée au laminé jusqu'à son maximum $0.689MPa$ soit $100PSI$ en simultané avec la température . Un vide de$-0.078MPa$ ($-23inHg$) est maintenu durant le cycle.

TABLEAU 2.5 Rôles des composants d'ensachage dans le processus de cuisson

Rôles principaux des composants d'ensachage	
composant	rôle
Suce à vide	À faire le vide
Mastique	Assure l'étanchéité entre sac et plaque d'aluminium
teflon	Empêche le composite une fois cuit de coller sur la plaque
	Protège le laminé de la dilatation thermique de l'aluminium durant la cuisson
Release Film	Par ses micros pores retient la résine tout en laissant passer l'air autour si le vide est fait
Breather	Uniformise le vide au sein de la plaque
Sac de cuisson	Sac à haute résistance thermique qui assure une bonne cuisson du laminé

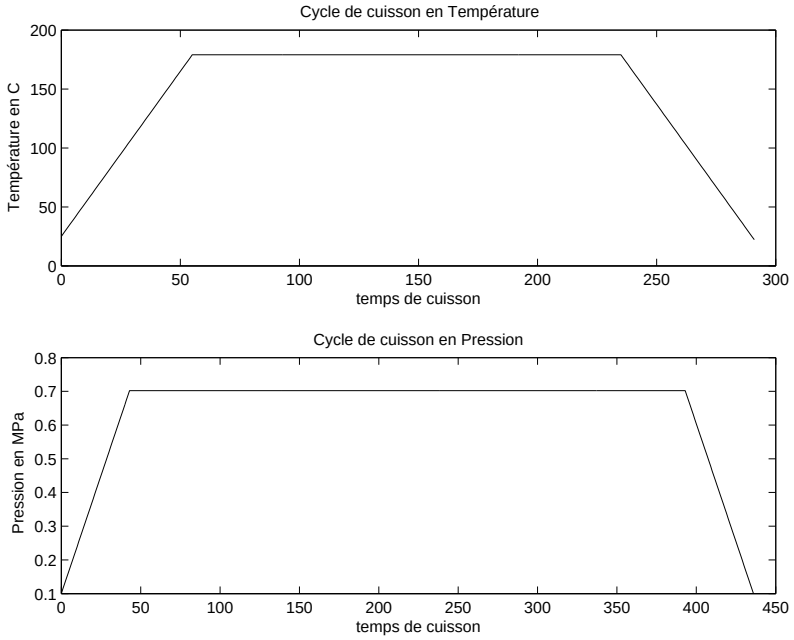


FIGURE 2.7 Cycle de cuisson proposé par Cytec [88]

2.2.2.5 Démoulage et découpes des bords

Après cuisson la plaque est démoulée, pesée et environ $2.54cm$ ($1''$) de matière est découpé sur tout le pourtour de la plaque afin de sécuriser la manipulation, car les bords sont de nature coupante.Au final nous obtenons une plaque de 27.94x58.42cm^2 ($11''$x $23''$).La pesée des plaques après le démoulage permet d'évaluer la quantité de résine perdue durant le processus de fabrication.

2.2.3 Propriétés théoriques équivalentes

Étant donné la difficulté d'obtenir expérimentalement avec une très grande certitude les masses et surfaces déterminées par les calculs théoriques préliminaires (voir tableau 2.4),à chaque fabrication nous pèserons systématiquement la masse des fibres, de résine, et nous mesurerons les dimensions exactes de la plaque avant la découpe des bords après cuisson. Ainsi nous pouvons réévaluer les propriétés théoriques équivalentes réelles de nos plaques. Un exemple de mesures lors de la fabrication est illustré par le tableau 2.6. De ces mesures, nous pouvons recalculer les propriétés physiques équivalentes de cette fabrication(voir tableau 2.7)

TABLEAU 2.6 Exemple de mesures lors d'une fabrication

Exemple de mesures	
Masse des fibres m_{fexp} découpée $(6plisNCF)$	$0.673kg$
Masse de la résine m_{rexp} découpée $(2plis)$	$0.38kg$
Surface S_{exp} réelle après démoulage	27.94x$58.42cm^2$ [a]

a. Cette différence est due à la difficulté expérimentale d'avoir les dimensions exactes théoriques de découpes

TABLEAU 2.7 Propriétés physiques équivalentes

Propriétés physiques équivalentes		
Propriétés	Formules	Valeurs
Volume de la résine Vol_{rexp}	$\frac{m_{rexp}}{\rho_r}$	$290.07cm^3$
Volume des fibres Vol_{fexp}	$\frac{m_{fexp}}{\rho_f}$	$378.08cm^3$
Volume de la plaque Vol_{Pexp}	$Vol_{rexp} + Vol_{fexp}$	668.16
V_f théorique équivalent	$\frac{Vol_{fexp}}{Vol_{Pexp}}$	56.59%
épaisseur théorique équivalente h_{th}	$\frac{Vol_{Pexp}}{S_{exp}}$	$3.20mm$

Nous voyons bien un léger décalage par rapport aux calculs théoriques préliminaires (voir tableau 2.4).Ce décalage est dû aux conditions réelles expérimentales (la masse de fibres et de la résine ainsi que la surface de fibre et de la résine réellement utilisées affectent les propriétés finales de la plaque) .Les conditions expérimentales sont donc à prendre en compte pour une analyse efficace.

2.3 Caractérisation physique

Des échantillons de surface 2.54x2.54cm^2 (1″x1″) sont prélevés dans les plaques fabriquées (voir figure 2.8). En récapitulatif, un total de 32 échantillons sera prélevé par plaque afin de mesurer leurs épaisseurs e_{exp}, leurs taux de fibres V_f, et leurs taux de vide ϵ :

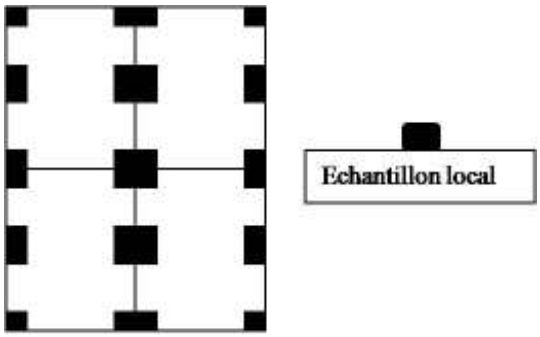


FIGURE 2.8 Échantillonnage des mesures

2.3.1 Mesure de densité

La mesure de densité des échantillons a été réalisée selon la procédure A de la norme $ASTMD792$.

La procédure est la suivante :

∗ Les échantillons sont nettoyés avec de l'acétone pour les purifier de tout corps étranger.

∗ Conditionnement au four à 100°C pendant 1h pour enlever l'humidité absorbée

∗ Mesure de leurs masses dans l'air, M_{air}

∗ Mesure de leurs masses dans de l'eau distillée à température de 24°C, M_{eau}

La procédure expérimentale est illustrée sur la figure 2.9

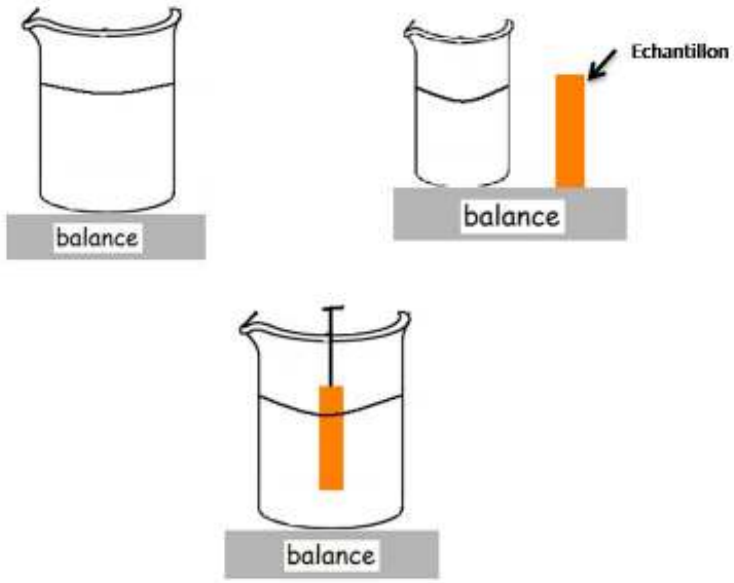


FIGURE 2.9 mesure de la masse volumique du composite

La différence entre M_{air} et M_{eau} donne la masse de l'eau déplacée.En accord avec la poussée d'Archimède, cela correspond au volume de l'échantillon. la masse volumique ρ_c du composite vaut :

$$\rho_c = \frac{M_{air}}{M_{air} - M_{eau}}$$

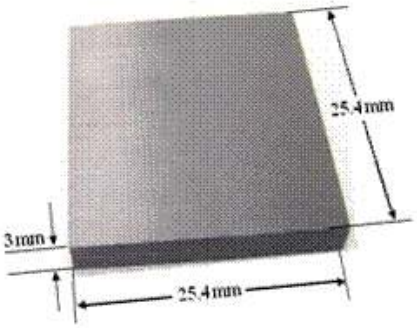
.

2.3.2 Principe de digestion : mesure de taux de vide/fibres

La digestion des échantillons composite a été faite selon la norme $ASTMD3171$.Les étapes sont les suivantes :

* Conditionnement au four à $100°C$ pendant $1h$ pour enlever l'humidité absorbée
* Placez chaque échantillon dans un bêcher contenant $25mL$ d'acide sulfurique (H_2SO_4)
* Chauffez les bêcher à l'aide de plaque chauffante jusqu'à l'assombrissement et dégagement de fumé de la solution
* Rajoutez $35mL$ de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2), la solution s'éclaircit
* Filtrez la solution à l'aide de filtre de verre
* Laver les fibres avec de l'eau distillée et de l'acétone
* Faire le vide pour aspirer toute la solution et laisser les fibres dans l'entonnoir
* Enrouler les fibres dans le filtre, puis les sécher au four pendant 1H
* Mesure de la masse des fibres (la masse des filtres étant connue).

Ces étapes sont illustrées par les figures 2.10,2.11,2.12.



(a) Préparation des échantillons

(b) Chauffe dans l'acide sulfurique

FIGURE 2.10 Procédure de digestion $ASTMD3171$

(a) Dégagement de fumé

(b) Ajout de peroxyde d'hydrogène

FIGURE 2.11 Procédure de digestion $ASTMD3171$

(a) Fibres lavées

(b) Fibres enroulées dans les filtres

FIGURE 2.12 Procédure de digestion $ASTMD3171$

2.3.2.1 Mesure du taux de fibres V_f et taux de vide

Nous pouvons distinguer deux grands modes de calcul de la fraction volumique de fibres V_f selon la norme $ASTMD792$:

∗ Le premier consiste à calculer un V_f en supposant un taux de vide nul

$*$ Le second consiste à calculer un V_f en considérant le vide
En notant $M_{filtre+fibre}$, la masse mesurée en réalité, la fraction massique W_f se calcul de la sorte

$$W_f = \frac{M_{filtre+fibre} - M_{fitre}}{M_{air}}$$

La densité théorique du composite ρ_{th} se calcul de la sorte

$$\rho_{th} = \frac{\rho_f \rho_m}{\rho_f(1 - W_f) + \rho_m W_f}$$

$$V_{f(sans\ vide)} = W_f \frac{\rho_{th}}{\rho_f}$$

$$V_{f(avec\ vide)} = W_f \frac{\rho_c}{\rho_f}$$

Dans ce travail nous considérerons que $V_f = V_f(avec\ vide)$ De sorte qu'en notant ϵ taux de vide, V_f celui des fibres et V_m celui de la matrice

$$V_f + V_m + \epsilon = 1$$

2.3.2.2 Mesure du taux de vide ϵ

Le taux de vide se mesure selon la norme $ASTMD371 - 09$ en considérant la différence entre la densité théorique du composite ρ_{th} et celle mesurée par l'expérimentation $ASTMD792$, ρ_c

$$\epsilon = \frac{\rho_{th} - \rho_c}{\rho_{th}}$$

2.3.3 Précisions et sensibilité des mesures de V_f et ϵ

Nous noterons Δm la précision de la balance.

2.3.3.1 Sensibilité pour ρ_c

$$\begin{aligned}
\rho_c &= \frac{M_{air}}{M_{air} - M_{eau}} \\
\frac{\Delta\rho_c}{\rho_c} &= \sqrt{\left[\frac{\Delta m}{M_{air}}\right]^2 + \left[\frac{\sqrt{2}\Delta m}{M_{air} + M_{eau}}\right]^2} \\
\frac{\Delta\rho_c}{\rho_c} &= \sqrt{\left[\frac{\Delta m}{M_{air}}\right]^2 + \left[\frac{\sqrt{2}}{\frac{M_{air}}{\Delta m} + \frac{M_{eau}}{\Delta m}}\right]^2}
\end{aligned}$$

2.3.3.2 Sensibilité pour W_f

D'après les développements précédents, nous pouvons écrire :

$$\frac{\Delta W_f}{W_f} = \sqrt{\left[\frac{\Delta m}{M_{air}}\right]^2 + \left[\frac{\sqrt{2}}{\frac{M_{fitre+fibre}}{\Delta m} + \frac{M_{fitre}}{\Delta m}}\right]^2}$$

2.3.3.3 Sensibilité pour ρ_{th}

En supposant que les quantités ρ_f et ρ_m sont déterminées sans incertitudes, on peut écrire que :

$$\frac{\Delta \rho_{th}}{\rho_{th}} = \frac{\Delta W_f}{W_f}$$

2.3.3.4 Sensibilité pour V_f

$$\frac{\Delta V_f}{V_f} = \sqrt{\left[\frac{\Delta W_f}{W_f}\right]^2 + \left[\frac{\Delta \rho_c}{\rho_c}\right]^2}$$

2.3.3.5 Sensibilité pour ϵ

$$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} = \sqrt{\left[\frac{\Delta \rho_c}{\rho_c}\right]^2 + \left[\frac{\Delta \rho_{th}}{\rho_{th}}\right]^2}$$

2.3.3.6 Sensibilité pour les épaisseurs

Il est à noter qu'un pied à coulisse sera utilisé pour la mesure des épaisseurs. L'épaisseur nominale$e$ étant de $3mm$. Notre pied à coulisse présente une précision de $0.02mm$

$$\frac{\Delta e}{e} \approx 0.67\%$$

2.3.3.7 Précisions des instruments de mesure

L'instrument principal de mesure sera la balance.
Nous utiliserons une balance de type METTLER $AE240$ 2.13 à deux plages de pesée.
$*$ L'un à $40g$ pour les petites pesées
$*$ L'autre à $200g$ pour les plus grandes pesées Nous utiliserons principalement la première plage de mesure. La précision Δm d'affichage à neuf de la première plage est indiquée

sur la fiche technique du METTLER $AE240$ et vaut $0.01mg$. L'usure dans le temps de la balance a fait régresser cette précision. Aujourd'hui, la précision d'affichage tend vers $0.1mg$. Δm vaut donc $10^{-4}g$. La plus petite masse mesurée sera la masse des fibres de carbone dans une surface 2.54x2.54cm^2 (1″x1″). Cette masse est de l'ordre du gramme g. Nous pouvons déduire que

$$\left[\frac{\Delta m}{M_{xx...}}\right]_{max} = \frac{\Delta m}{M_f} \approx 10^{-2}\%$$

.

FIGURE 2.13 Balance METTLER $AE240$

2.3.3.8 Tableau récapitulatif des précisions de mesure

Le tableau 2.8 donne un récapitulatif numérique des calculs de précisions évoqués précédemment

TABLEAU 2.8 Limites des mesures

Précisions de mesure	
Épaisseurs e	$\frac{\Delta e}{e} \approx 0.67\%$
taux de fibres V_f	$\frac{\Delta V_f}{V_f} \approx 0.0173\%$
taux de vide ϵ	$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} \approx 0.0173\%$

2.3.4 Observation Qualitative au C-scan

2.3.4.1 Généralité sur le C-scan

Le C-scan illustré sur la figure 2.14 est un dispositif ultrasonore, très répandu dans le milieu industriel, le C-scan fait partie des méthodes d'inspections non destructives (NDI). Les porosités/ irrégularités d'épaisseurs dans le matériau viennent perturber la propagation du

signal dans le composite. Cependant, il permet de détecter la présence de non-conformités dans la pièce sans pour autant préciser la nature du défaut.

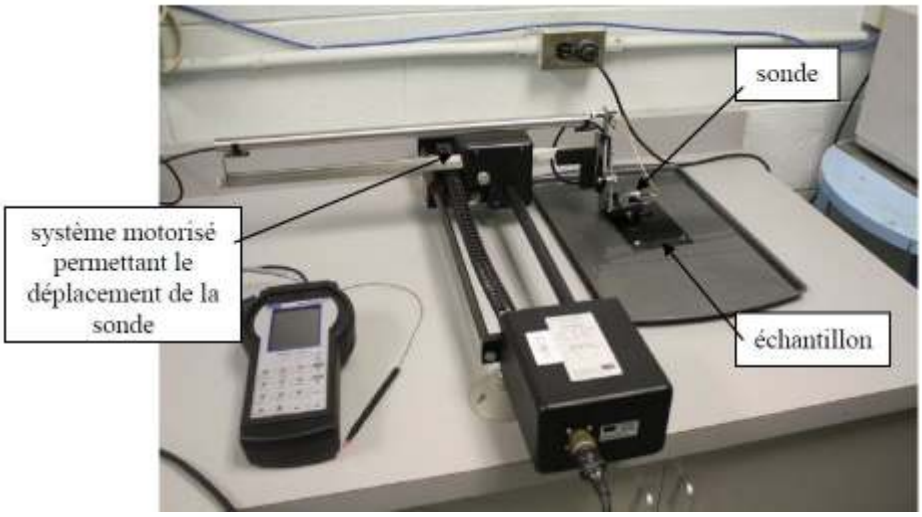


FIGURE 2.14 C-scan

2.3.4.2 Principe de fonctionnement du C-scan

Une onde ultrasonore est émise par une sonde et est réfléchie en présence d'une discontinuité dans le matériau.Le C-scan permet de détecter les défauts dans le volume du matériau. La figure 2.15 illustre le principe.La profondeur des défauts est donnée en mm en partant de la surface de la plaque en contact avec la sonde. Un exemple de résultat est l'illustré la figure 2.16.Un même principe de balayage sera appliqué à toutes nos plaques.

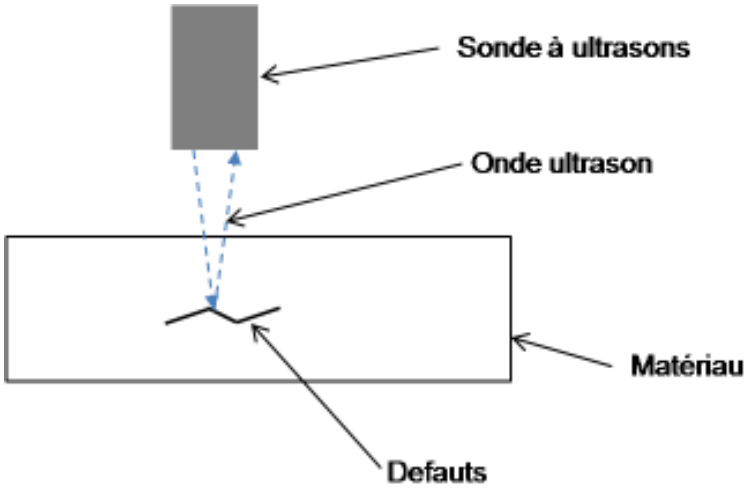


FIGURE 2.15 Principe de fonctionnement d'un C-scan

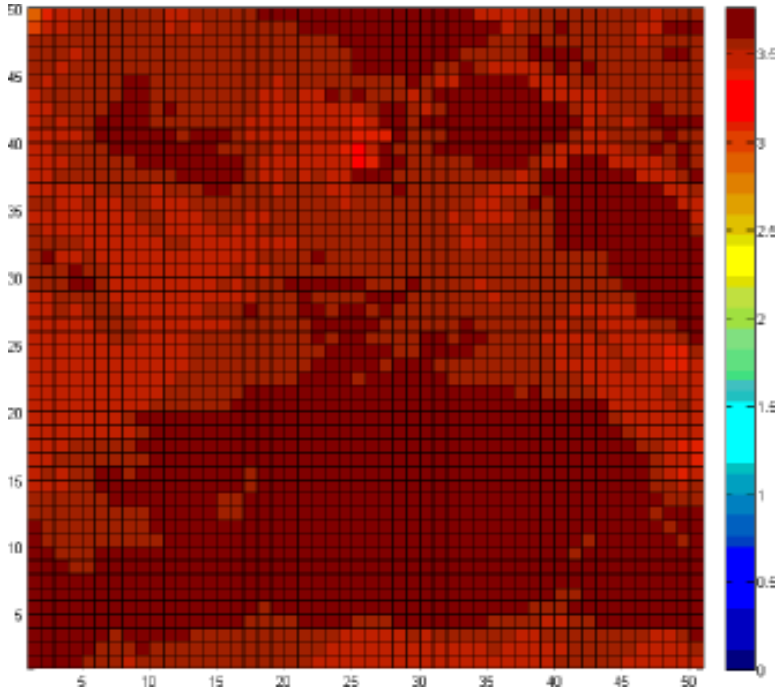


FIGURE 2.16 Exemple de résultat d'un balayage par C-scan

Chapitre 3

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET MODÉLISATIONS

3.1 Mesures, et Approximations statistiques

3.1.1 Généralité

L'ensemble des mesures (épaisseurs H, taux de fibres V_f , taux de vide ϵ) réalisé est de nature discrète sur la plaque.Les points de mesure discrets sont illustrés sur la figure 2.8 du chapitre 2 section 1.4.1.2. Une méthode optimale d'interpolation spatiale statistique appelée krigeage a été utilisée pour avoir une évolution qualitative continue des propriétés mesurées de façon discrète.

Le krigeage est une méthode utilisée couramment dans le domaine du génie minier, dans le but d'évaluer la quantité de gisement à partir d'informations discrètes. C'est une méthode d'interpolation très utile.Les débuts du krigeage remontent à l'ingénieur minier sud-africain D.G.Krige qui dans les années 50 a introduit des méthodes statistiques empiriques dans le but d'évaluer la distribution spatiale de minerais en fonction d'un ensemble de forages discrets.Nous devons au Français Matheron la formalisation mathématique de l'approche de Krige avec l'introduction de corrélations spatiales entre forages. Matheron[89] introduit par la suite le terme géostatistique dans ses notions et baptisa la méthode spatiale "krigeage" en l'honneur de son précurseur.

La méthode de krigeage trouve son application dans de nombreux domaines : de la météorologie à l'océanologie en passant par l'économie, etc.

3.1.2 Application à nos mesures

La formulation détaillée du krigeage 2D adapté à nos mesures est illustrée en Annexe.Cependant, nous rappellerons les grands points de cette théorie. On suppose la fonction G représentant la propriété mesurée, G est de nature probabiliste dont les réalisations $G(x_i, y_i)$ sont des propriétés locales de l'espace aux points $P_i(x_i, y_i)$. le modèle probabiliste de la variable aléatoire G est :

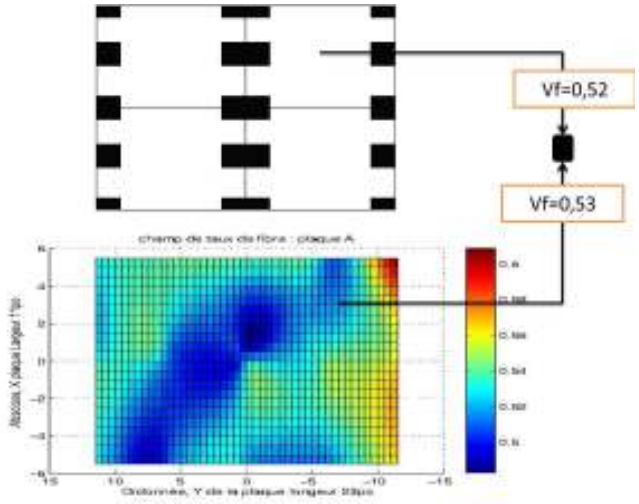
$$G(x, y) = a(x, y) + w(x, y)$$

$a(x, y)$ est appelé dérive et représente la valeur moyenne de G et $w(x, y)$ représente les fluctuations autour de cette valeur moyenne

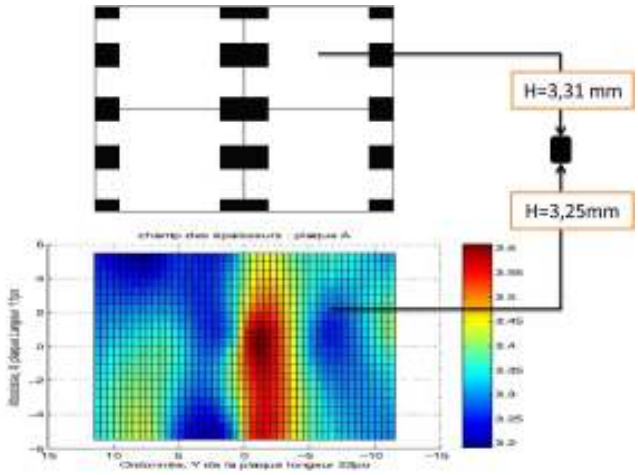
Le krigeage s'effectue en deux étapes :
∗ construire à partir des réalisations de G un estimateur linéaire sans biais.
∗ minimiser la variance de cet estimateur sous la contrainte de non-biais.

Il en ressort deux choix fondamentaux :
∗ La forme de la dérive qui a été prise constante pour toutes nos mesures, car en théorie nous avons une valeur constante pour chaque propriété (H, V_f, ϵ)
∗ la covariance généralisée qui dans notre cas est de forme cubique ce qui rend l'interpolation au sens d'Hermite, dont les polynômes sont utilisés en CAO pour régulariser les courbes et surfaces.

En utilisant les équations développées dans l'annexe et le logiciel Matlab, nous avons pu quantifier l'évolution globale de chaque propriété mesurée localement à partir de 32 échantillons de mesure. Le nombre d'échantillons influe sur la précision que nous avons tenté d'estimer figures 3.1 et 3.2.



(a) Approximation globale de V_f, $e_{V_f} \approx 1.92\%$



(b) Approximation des épaisseurs H,$e_H \approx 1.82\%$

FIGURE 3.1 Approximation de V_f, H avec erreurs d'approximations e

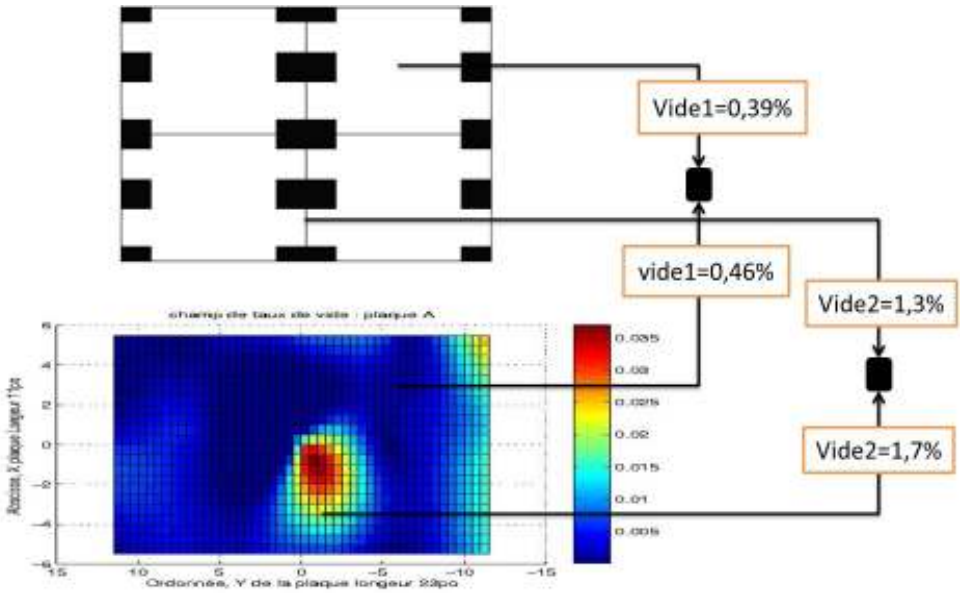


FIGURE 3.2 Approximation globale de vide ϵ, $e_\epsilon^1 \approx 18\%$, $e_\epsilon^2 \approx 10\%$

3.2 Optimisation du drapage

Les expériences sur les modes de drapage nous ont permis de mieux cerner les enjeux existants entre la position du film de résine et les propriétés physiques de la plaque.

3.2.1 Drapage Mode primaire

Les modes primaires concernent la position du film entre les plis du laminé. Une description visuelle est représentée par les figures 2.3 et 2.4. Nous allons donc analyser l'évolution des épaisseurs, taux de fibres et vides pour chacune de nos fabrications du mode primaire.

3.2.1.1 Analyse de l'évolution des épaisseurs

En utilisant le modèle d'approximation par krigeage introduit nous avons cartographié les épaisseurs de chaque plaque du mode primaire (figures3.3 et 3.4).Ces figures montrent que les fortes épaisseurs sont surtout dans les modes primaires C et D. Le champ des épaisseurs témoigne du champ d'écoulement lors du processus de fabrication.Ce champ a été figé après le gel de la résine donnant naissance à des irrégularités d'épaisseurs. La dispersion des épaisseurs sur chaque plaque a été évaluée, il s'agit de l'écart type entre la mesure des 32 échantillons (figure2.8) prélevés sur la plaque. La dispersion nous renseigne sur la fiabilité de la plaque. Une très forte dispersion est synonyme d'une plaque à rigidité variable. Les plaques à rigidité variables sont des sièges de fortes concentrations de contrainte et nécessitent un design particulier selon le champ des efforts .La figure 3.5 ci-dessus, témoigne d'une dispersion maximale pour les plaques B et D tandis que celle des plaques A et C reste minimale. L'écart moyen représente l'écart entre la valeur théorique équivalente (cf section 2.2.3) et la moyenne de l'échantillonnage de mesure expérimentale. L'écart moyen nous renseigne sur la fiabilité du procédé à respecter le cahier des charges .Les figures 3.5 et3.6révèlent que les plaques A et C présentent une plus grande régularité d' épaisseurs et fiabilité vis-à-vis du design théorique.

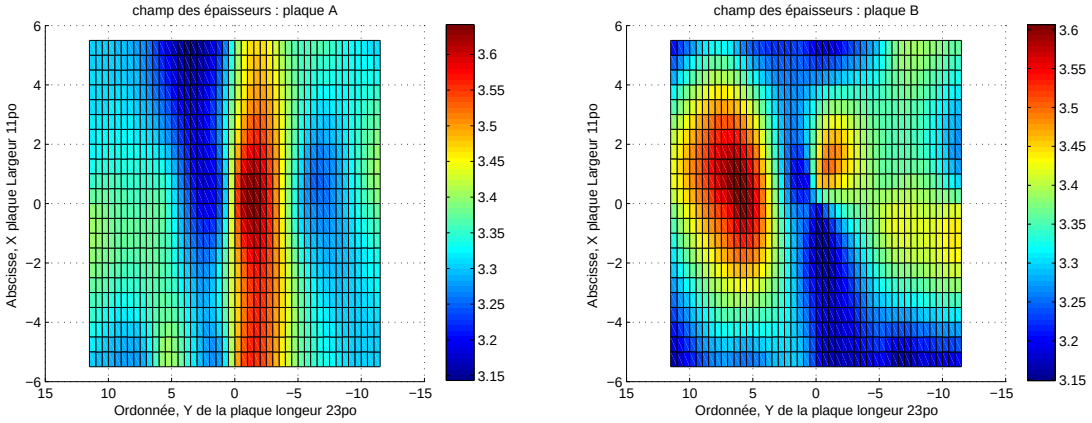
3.2.1.2 Analyse de l'évolution du taux de fibres

Les cartographies du taux de fibres V_f sur nos plaques du mode primaire sont illustrées par les figures 3.7 et 3.8. Celles-ci montrent une certaine homogénéité du mode A et B. Le mode C présente de grandes variations à son sein. La figure3.9 relate une moyenne de taux de fibres V_f proche de la théorie pour chaque plaque.Nous verrons par la suite qu'avec des irrégularités dans la dépose du film de résine, cette moyenne augmentera(figure 3.10)

3.2.1.3 Analyse de l'évolution du taux de vide

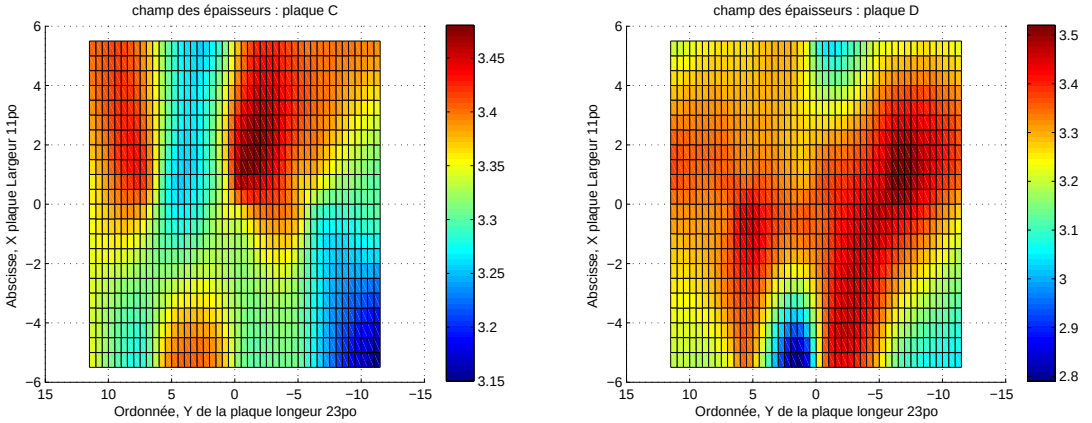
Les cartographies du taux de vide ϵ sur nos plaques du mode primaire sont illustrées par les figures 3.11 et 3.12. À travers ces figures nous pouvons remarquer que le taux de

vide de la plaque C (figure 3.12a) est inacceptable, car le champ montre une évolution de 2% à 11% cela s'explique par le fait que l'air qui se trouve entre les deux plis de résine (dans les couches de fibres) peut difficilement sortir lors de la fabrication et devient donc des poches de vide. La plaque D(figure 3.12b) a par contre une meilleure répartition du taux de vide. En ce qui concerne le taux de vide moyen, la figure 3.13 montre qu'en général le taux de vide de la plaque est inférieur à 1% sauf pour le cas de la plaque C qui reste légèrement supérieur à 1% Les maximums locaux de taux de vide constituent des zones critiques de charge, il est donc essentiel de les avoir aussi bas que possible. La figure 3.14 représente le taux de vide maximum sur chaque plaque du monde primaire. On y voit un meilleur résultat sur la plaque D et une plaque C totalement inacceptable, car localement le taux de vide peut atteindre 11%.


champ des épaisseurs : plaque A
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po
champ des épaisseurs : plaque B
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po

(a) champ des épaisseurs mode A (b) champ des épaisseurs mode B

FIGURE 3.3 champ des épaisseurs en mm : Modes primaires de fabrication A et B


champ des épaisseurs : plaque C
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po
champ des épaisseurs : plaque D
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po

(a) champ des épaisseurs mode C (b) champ des épaisseurs mode D

FIGURE 3.4 champ des épaisseurs en mm : Modes primaires de fabrication C et D

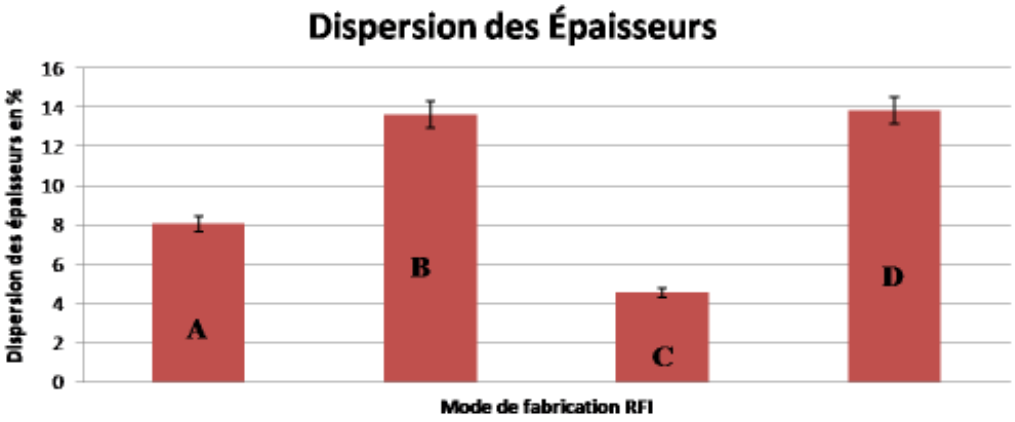


FIGURE 3.5 Dispersion des épaisseurs : modes primaires de fabrication

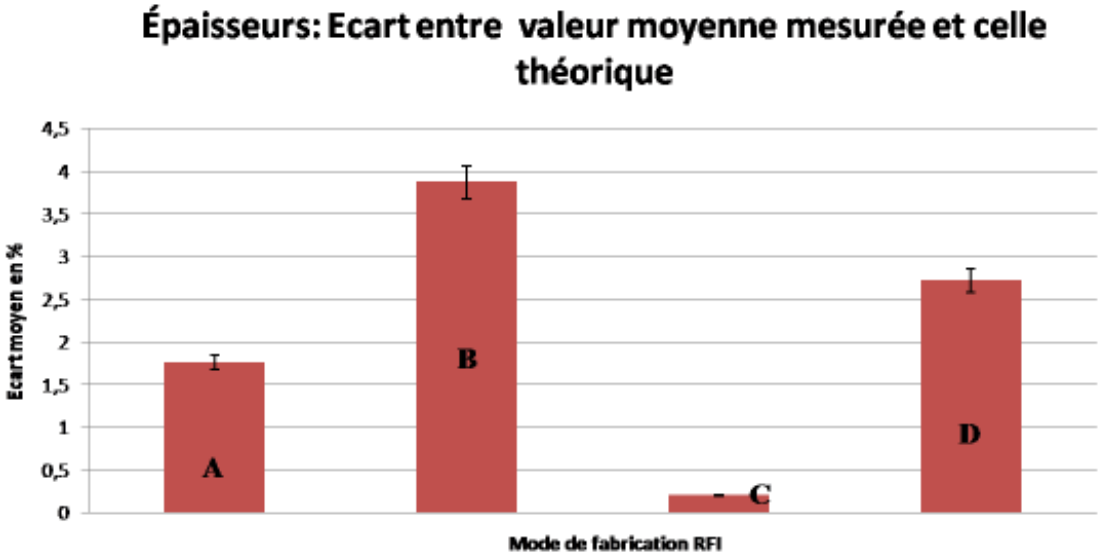
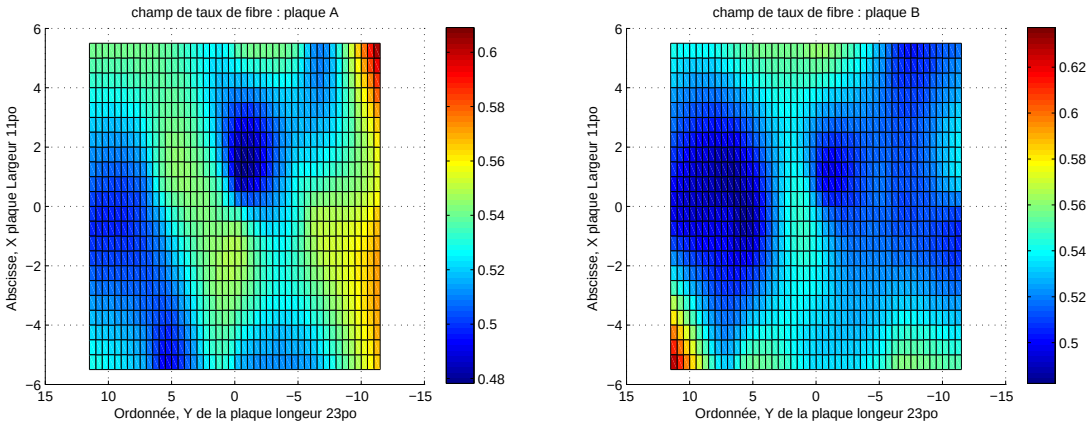
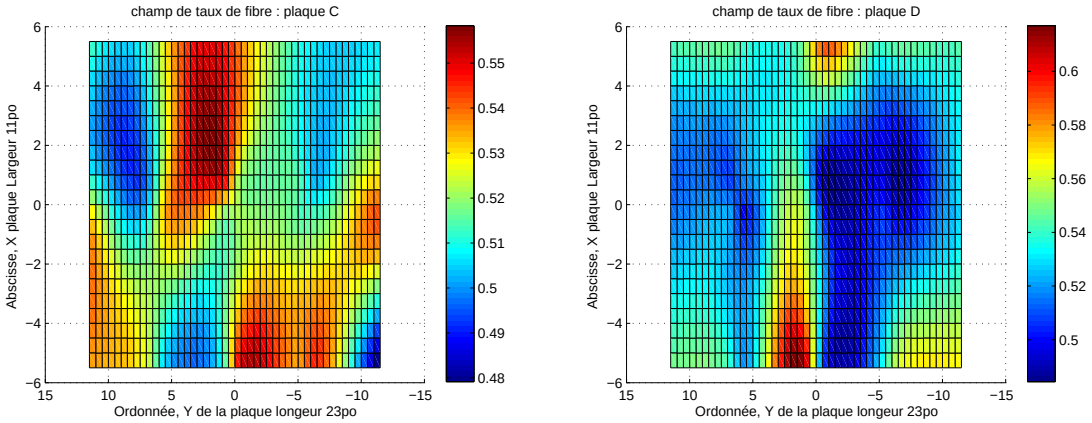


FIGURE 3.6 Écart moyen des épaisseurs :modes primaires de fabrication


champ de taux de fibre : plaque A
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po
champ de taux de fibre : plaque B
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po

(a) champ de V_f mode A (b) champ de V_f mode B

FIGURE 3.7 champ de V_f : Modes primaires de fabrication A et B


champ de taux de fibre : plaque C
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po
champ de taux de fibre : plaque D
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 23po

(a) champ de V_f mode C (b) champ de V_f mode D

FIGURE 3.8 champ de V_f : Modes primaires de fabrication C et D

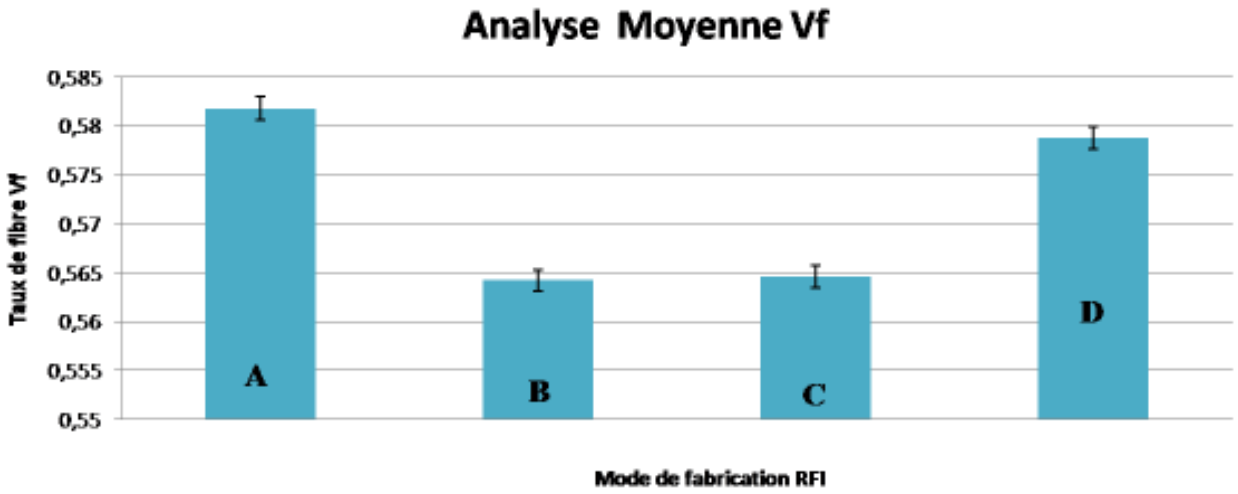


FIGURE 3.9 Maximum des V_f

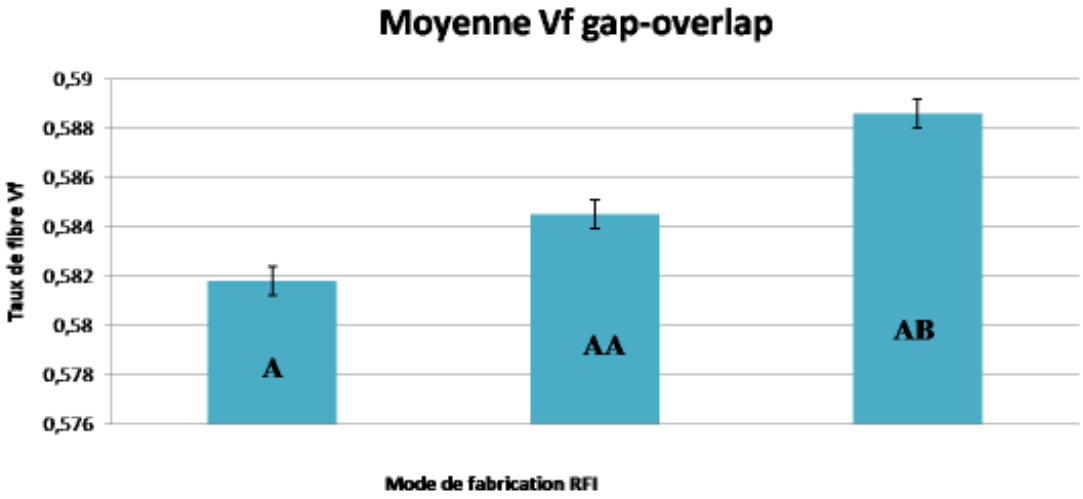
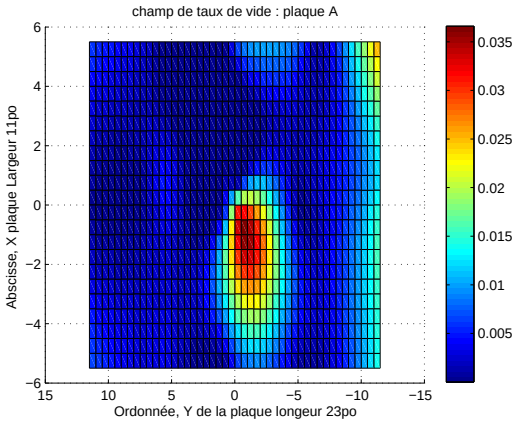
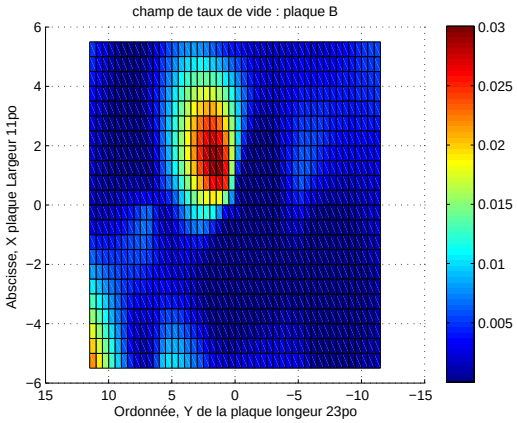


FIGURE 3.10 Moyenne V_f :modes secondaires de fabrication

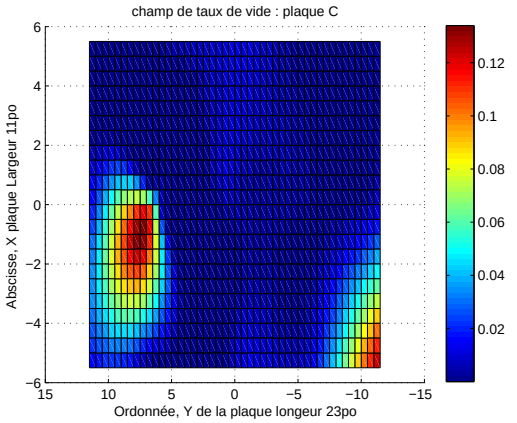


(a) champ de vide mode A

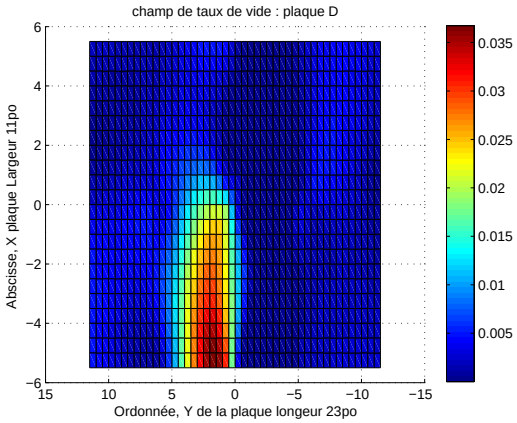


(b) champ de vide mode B

FIGURE 3.11 champ de vide : Modes primaires de fabrication A et B



(a) champ de vide mode C



(b) champ de vide mode D

FIGURE 3.12 champ de vide : Modes primaires de fabrication C et D

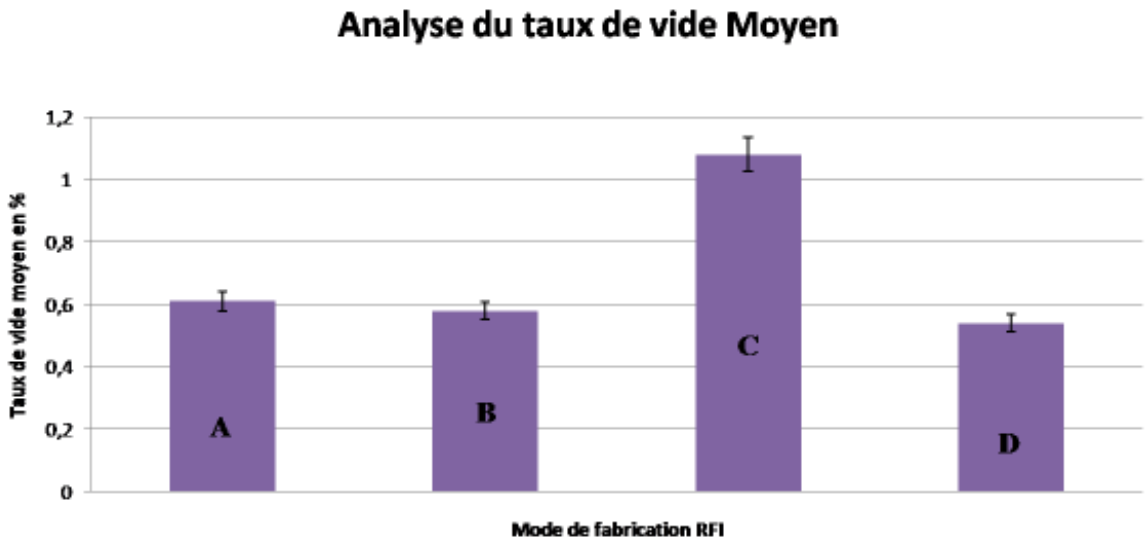


FIGURE 3.13 Taux de vide moyen :modes primaires de fabrication

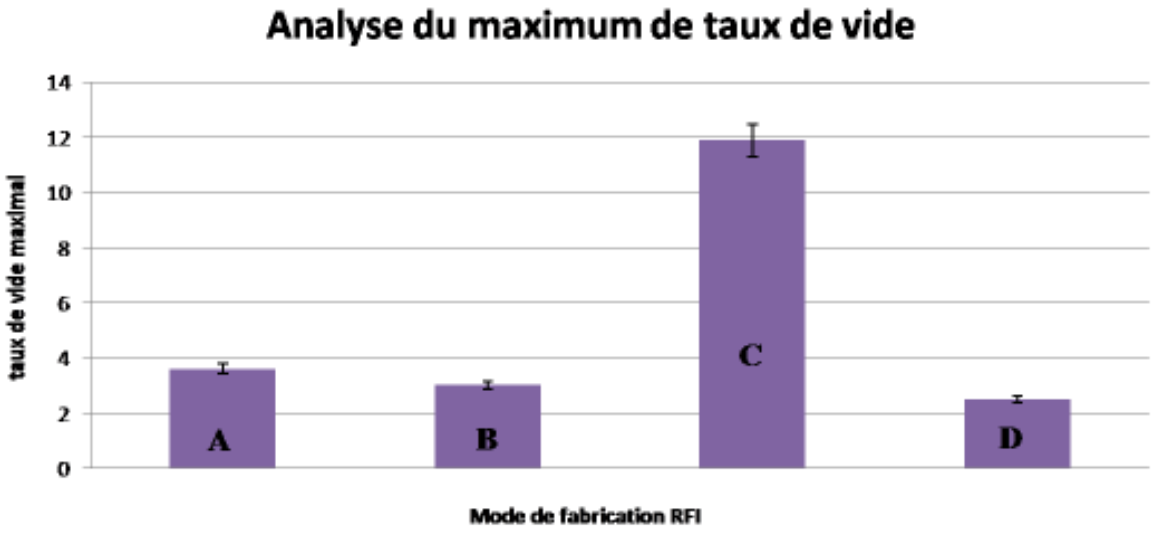


FIGURE 3.14 Taux de vide maximum :modes primaires de fabrication

3.2.2 Drapage secondaire

Les modes secondaires concernent la position du film dans le plan du laminé. Une description visuelle est représentée par la figure2.5.Deux plaques ont été produites : AA et AB. La plaque AA possède des gaps et overlaps entre $0.6 - 2.54cm$ et AB des gaps et overlaps plus grands $2.54 - 6.45cm$. Le mode primaire de drapage de ces deux plaques restant A. Comme pour les modes primaires, nous allons donc analyser l'évolution des épaisseurs, taux de fibres et vides pour chacune de nos fabrications du mode secondaire.

3.2.2.1 Analyse de l'évolution des épaisseurs

Les figures3.15 et 3.16 représentent l'approximation de cartographie des épaisseurs. Nous pouvons tirer de ces cartes, la présence de franges témoignant d'irrégularités dues aux gaps et aux overlaps de résines. La dispersion des épaisseurs illustrée par la figure 3.17 est bien croissante avec des gaps et overlaps. Le mode A étant le mode primaire dépourvu de gaps et overlaps. En ce qui concerne la valeur moyenne, sur la figure3.18 Il apparaît que les très petits gaps permettent de se rapprocher en moyenne de l'épaisseur théorique.

3.2.2.2 Analyse de l'évolution du taux de fibres

Comme le témoignent les figures 3.19a et 3.19b les champs de taux de fibres V_f sont dispersés suivant ceux des épaisseurs. Par contre il apparaît qu'avec l'empaleur des gaps et overlaps, la moyenne globale de V_f augmente (figure 3.10). Cela est dû aux irrégularités qui créent localement des V_f élevés, ce qui contribue à l'augmentation du V_f d'ensemble.

3.2.2.3 Analyse de l'évolution du taux de vide

Les champs de vide (figures 3.20b, 3.20a) montrent la présence de poches de vide à volume plus élevé localement dans la plaque AB que AA. Les figures 3.21 et 3.22 qui représentent respectivement le taux de vide moyen et le taux de vide maximal montrent que la plaque AB est la plus critique avec un taux de vide moyen et maximal élevé.Cependant, la plaque AA montre un meilleur résultat que la plaque traditionnelle A

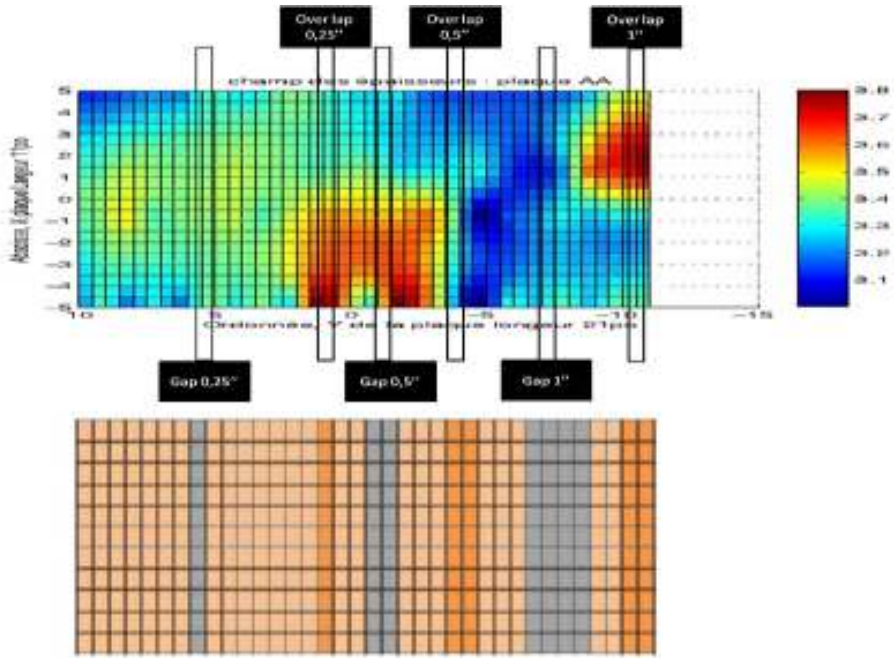


FIGURE 3.15 Champ des épaisseurs : mode de fabrication secondaire AA en mm

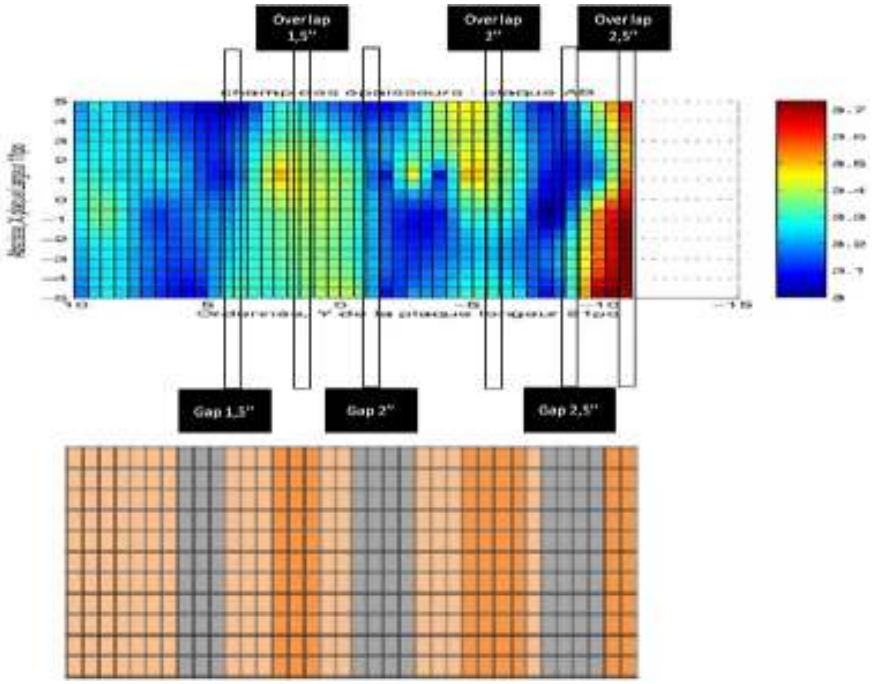


FIGURE 3.16 Champ des épaisseurs : mode de fabrication AB en mm

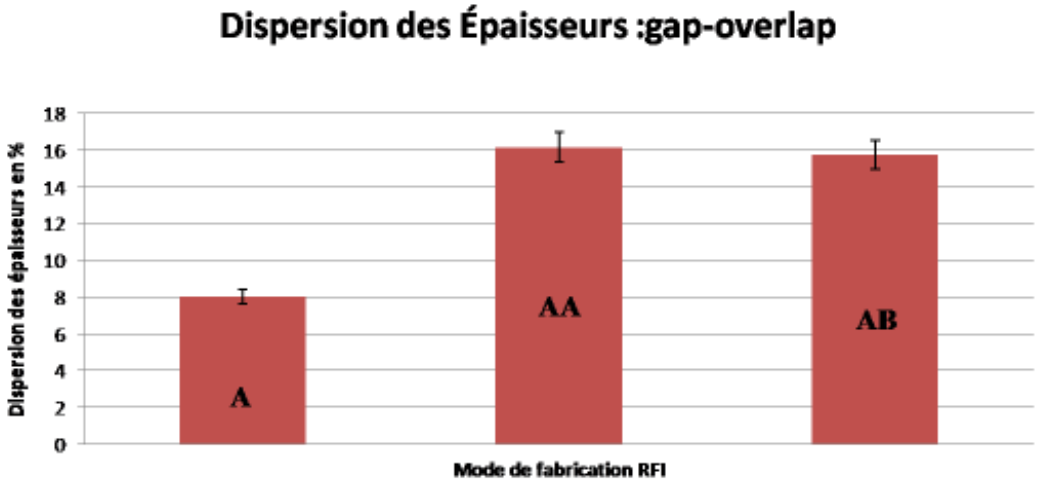


FIGURE 3.17 Dispersion des épaisseurs : modes secondaires de fabrication

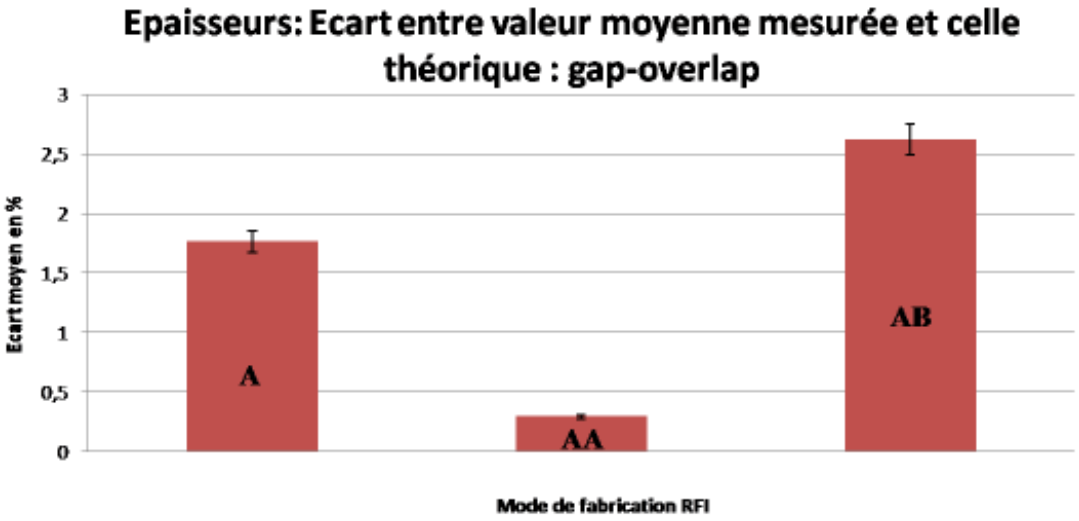
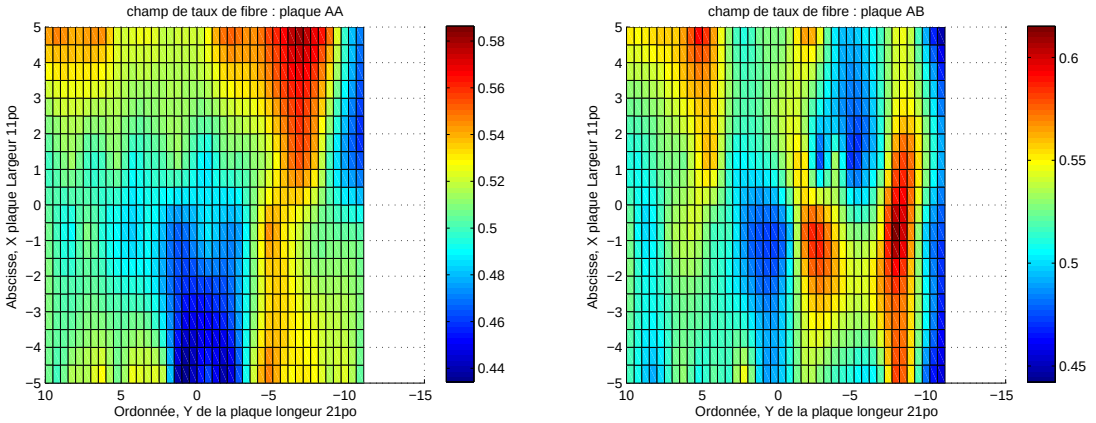
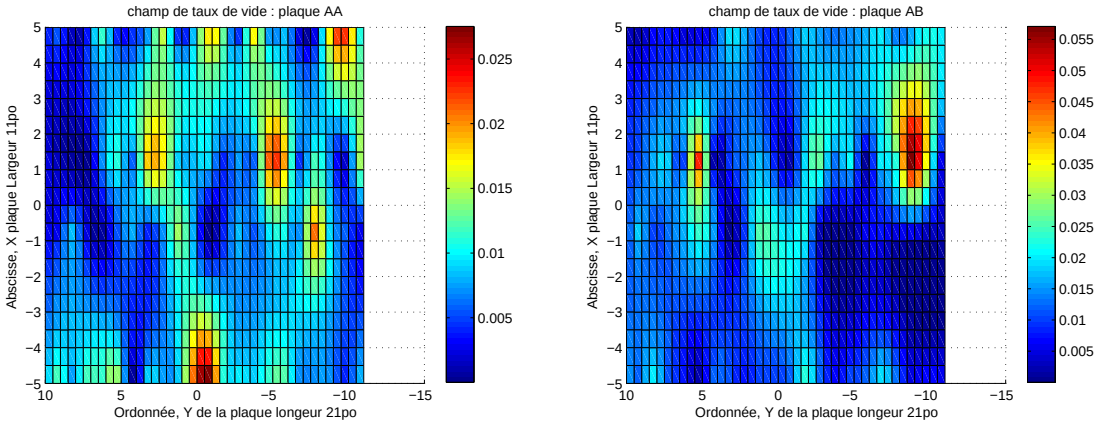


FIGURE 3.18 Écart moyen des épaisseurs :modes secondaires de fabrication


champ de taux de fibre : plaque AA
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 21po
champ de taux de fibre : plaque AB
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 21po

(a) champ de V_f mode AA (b) champ de V_f mode AB

FIGURE 3.19 champ de V_f : Modes secondaires de fabrication AA et AB


champ de taux de vide : plaque AA
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 21po
champ de taux de vide : plaque AB
Abscisse, X plaque Largeur 11po
Ordonnée, Y de la plaque longeur 21po

(a) champ de vide mode AA (b) champ de vide mode AB

FIGURE 3.20 champ de vide : Modes secondaires de fabrication AA et AB

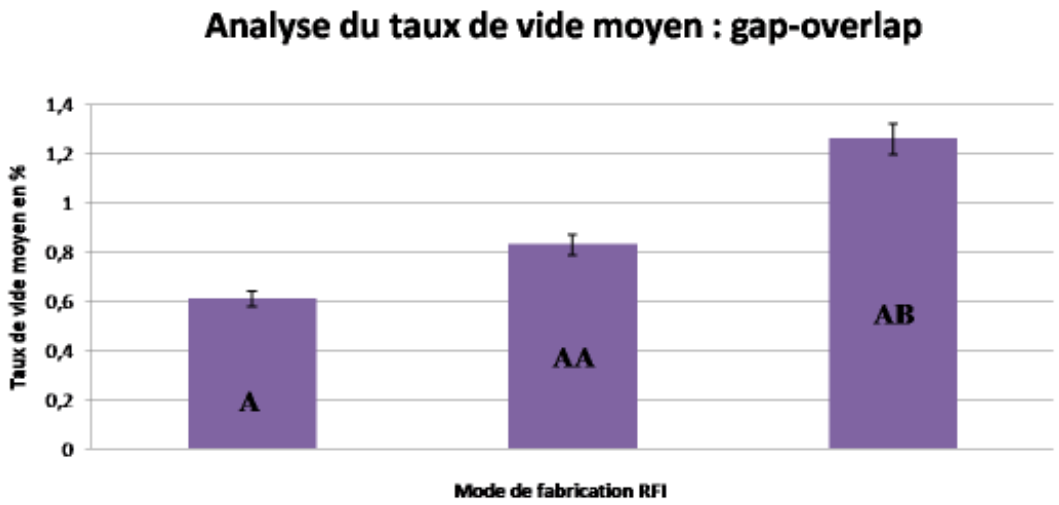


FIGURE 3.21 Taux de vide moyen :modes secondaires de fabrication

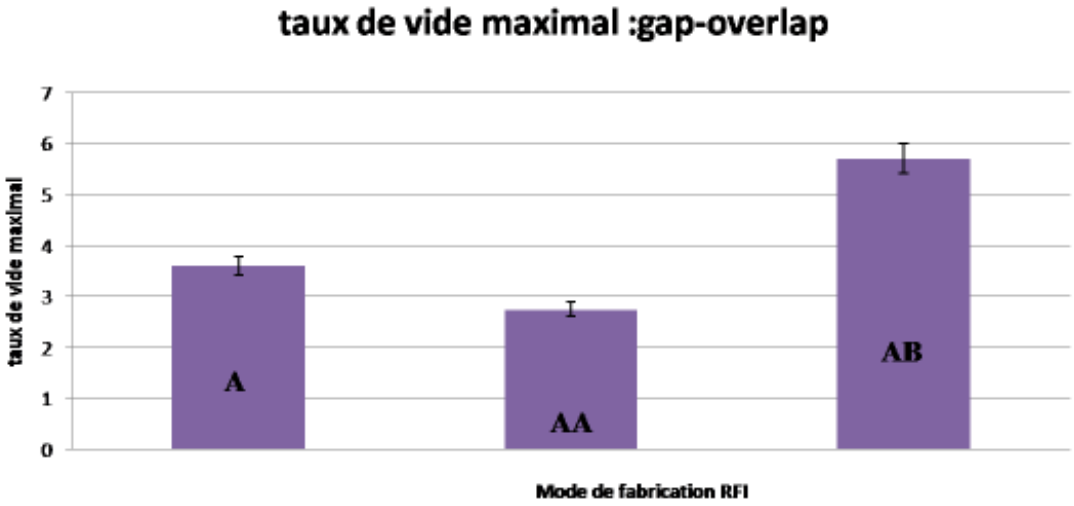


FIGURE 3.22 Taux de vide moyen :modes secondaires de fabrication

3.3 Observation qualitative des plaques au C-scan

Nous avons effectué quelques observations avec un C-scan d'une région bien précise de la plaque illustrée à la figure 3.23. Nous avons effectué une observation sur chacune de nos plaques.

∗ Observation de la plaque du mode primaire A 3.24
En comparant cette observation (figure 3.24) avec le champ des épaisseurs (figure 3.3a) il apparaît de légers défauts à l'intérieur (zones plus profondes que 3.15mm).

∗ Observation de la plaque du mode primaire B 3.25
En comparant cette observation avec le champ des épaisseurs (figure 3.3b) il apparaît des défauts surfaciques (zones plus profondes que 3.6mm)

∗ Observation de la plaque du mode primaire C3.26
En comparant cette observation (figure 3.26) avec le champ des épaisseurs (figure 3.4a) il apparaît des défauts à l'intérieur (zones plus profondes 3.15).La plaque C est la pire de nos résultats et cela se voit, car près du plan milieu (à la profondeur de $1.5mm$) il apparaît des défauts, probablement des poches de vide. Il est susceptible que des poches d'air soient restées emprisonnées dans le plan milieu durant la phase de cuisson.

∗ Observation de la plaque du mode primaire D3.27
En comparant cette observation (figure 3.27) avec le champ des épaisseurs (figure 3.4b) il apparaît des défauts à l'intérieur (zones plus profondes 2.8).Il s'agit probablement de poches de vide emprisonnées dans la résine, car rappelons que le film de résine est en surface dans ce mode.

∗ Observation de la plaque du mode secondaire AB3.28
Il apparaît localement sur la figure 3.28 que les défauts notamment les poches de vide se concentrent dans les zones à fortes épaisseurs donc à fort taux de résines, les figures3.27 3.26 confirment ce fait. On peut donc découpler les effets de gaps et overlaps, et une corrélation peut être faite entre le taux de vide et le taux de résine (overlaps).

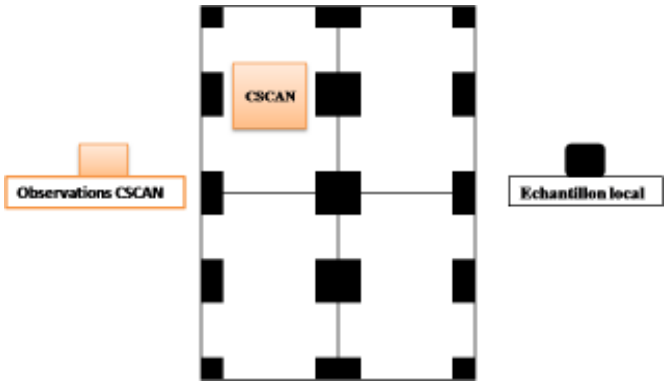


FIGURE 3.23 Zone d'observation C-scan

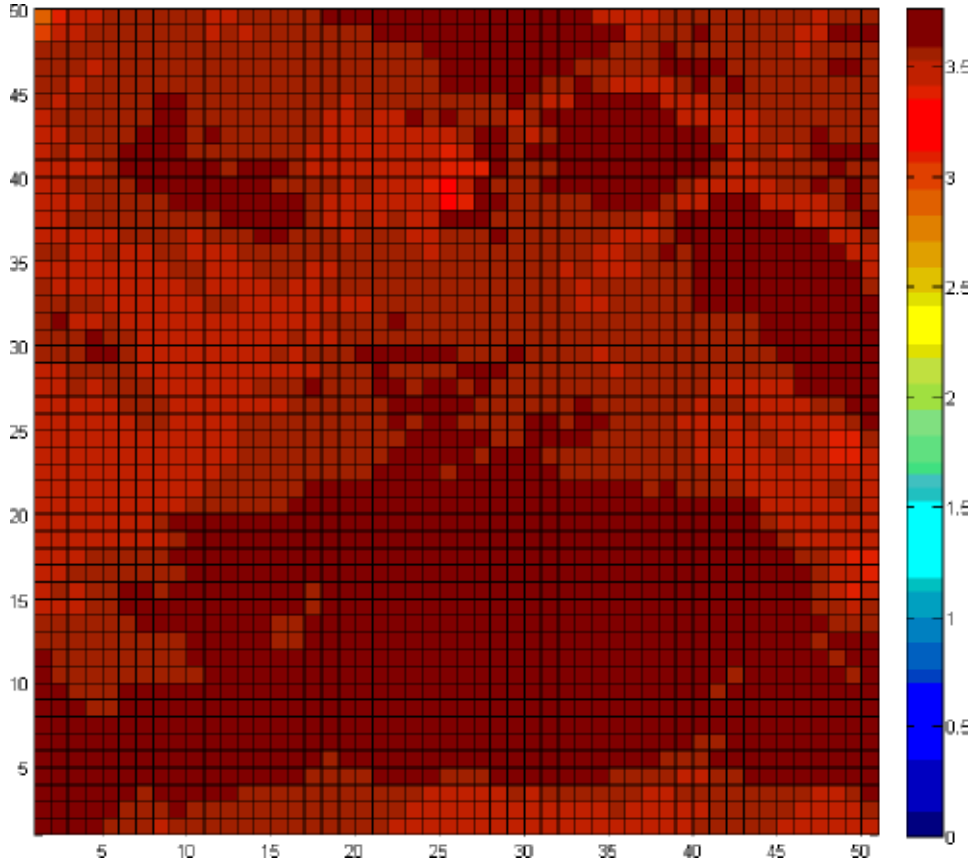


FIGURE 3.24 C-scan plaque du mode primaire A

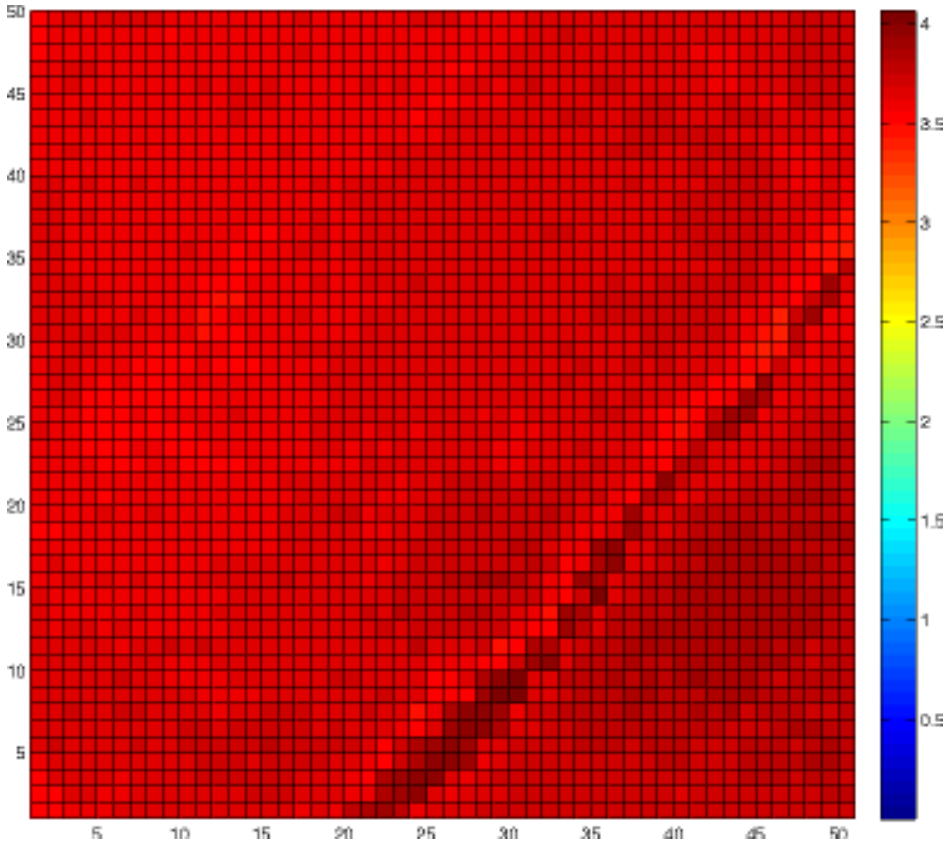


FIGURE 3.25 C-scan plaque du mode primaire B

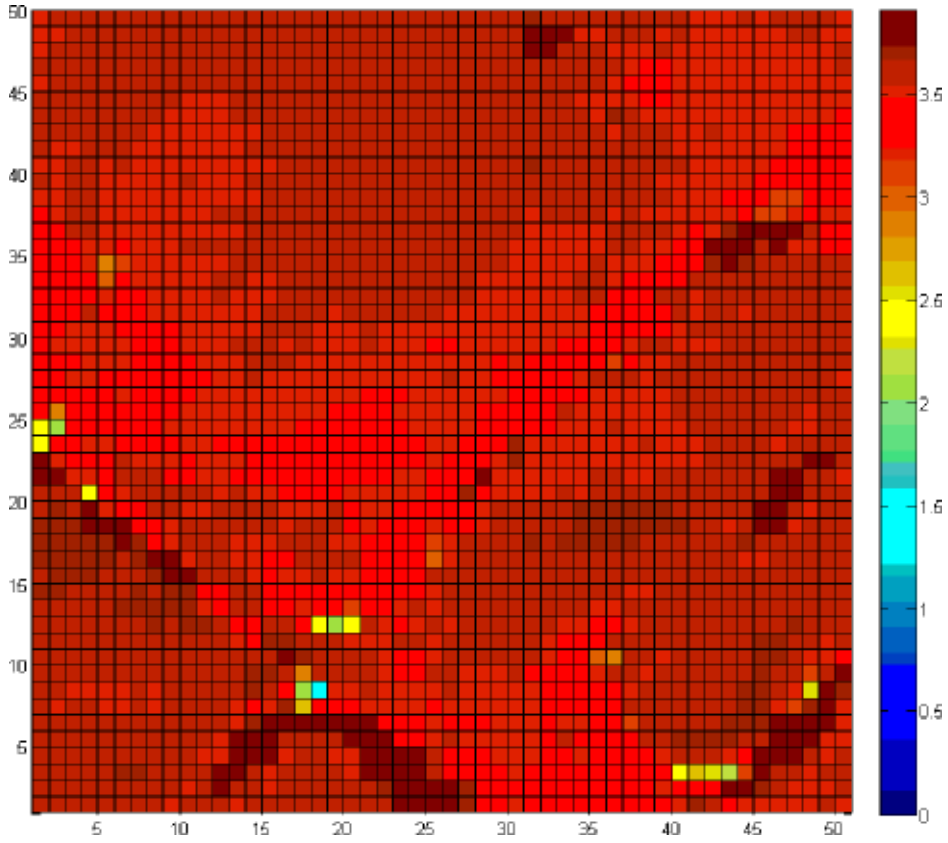


FIGURE 3.26 C-scan plaque du mode primaire C

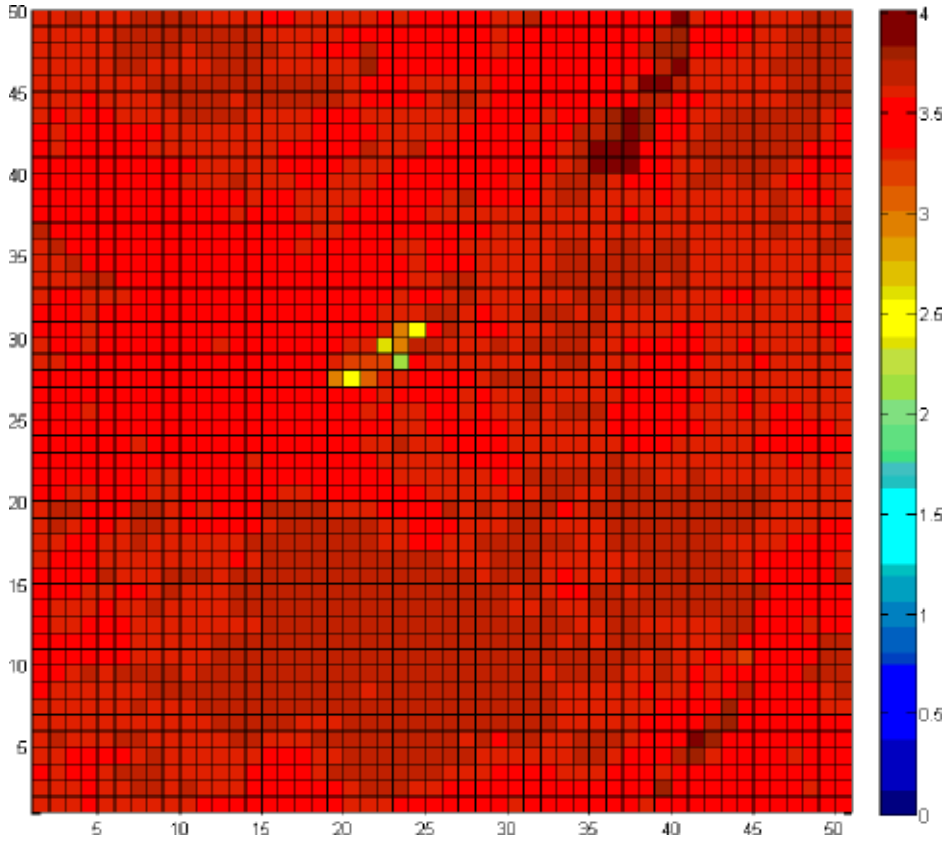


FIGURE 3.27 C-scan plaque du mode primaire D

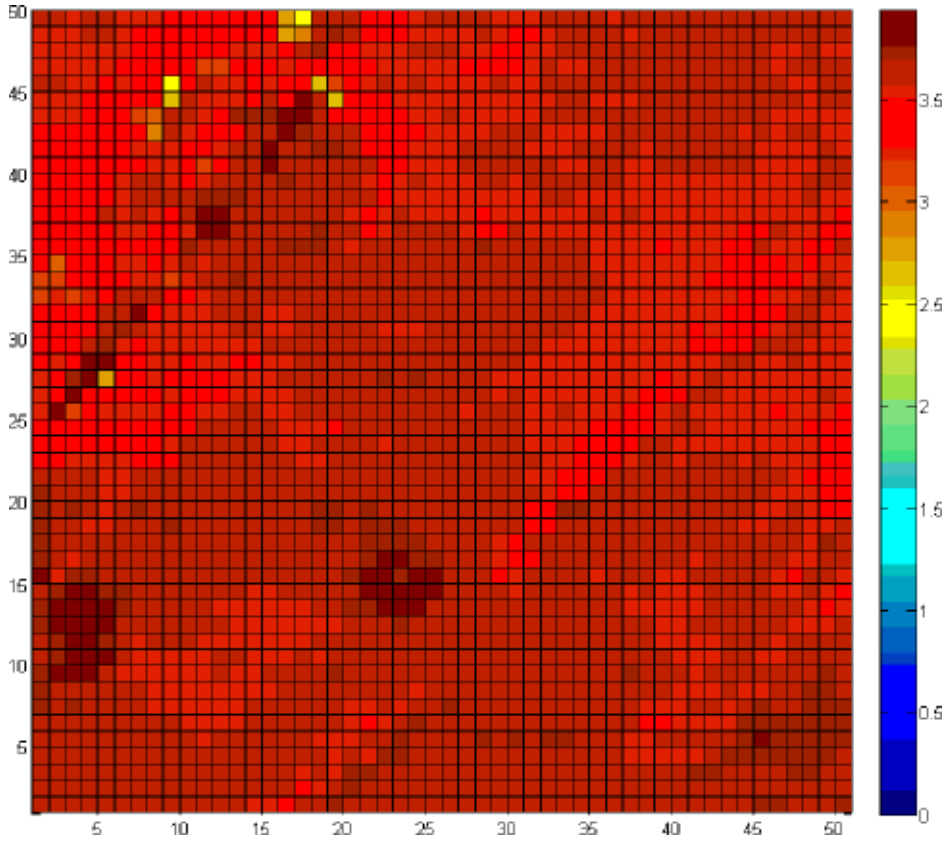


FIGURE 3.28 C-scan plaque du mode secondaire AB

3.4 Modèles et Simulations

Deux grands modèles d'évolution de porosités seront simulés et discutés tous basés sur les développement de la section 1.4.1.2 :

∗ Le premier concerne l'influence thermomécanique vue au chapitre basé sur le modèle de Ledru [79].

$$\frac{\dot{R}_p}{R_p(t)} = \frac{P_0 \frac{T(t)}{T_0} \left[\frac{R_{p0}}{R_p(t)}\right]^3 - P_{imp}(t)}{\eta(T,\alpha)} - \frac{\gamma_{LV}}{2\eta(T,\alpha)R_p(t)}$$

∗ Le second concerne l'influence thermodiffusive basé sur le modèle de Kardos[57, 77, 78]

$$R_p(t) = 4B[D(T)t]^{1/2}$$

que vaut $\eta(T,\alpha)$ α indispensable pour la résolution des équations ci-dessus ? La cinétique de cuisson pour chaque palier de cuisson est modélisée par le modèle de Springer-Loos [5]. qui est un variant de celui de Kamal-Sourour [35] :

$$\frac{d\alpha}{dt} = \left[k_1(T) + k_2(T)\alpha\right](1-\alpha)(b_1-\alpha) \text{avec} k_i = A_i e^{\frac{-E_i}{RT}}$$

La viscosité quant à elle suit le modèle moléculaire de Kenny [28] :
$\eta^* = A_\mu e^{\frac{E_\mu}{RT}} \left(\frac{\alpha_g}{\alpha_g - \alpha}\right)^{A+B}$
Le temps de gel est caractérisé par une viscosité à valeur complexe, et sera utilisé pour mettre fin à la simulation, car la résine perd ses propriétés fluides après ce temps et l'état des porosités se trouve donc figé en son sein. Un tableau de résultats de degré de cuisson issue de cuissons isothermes et dynamiques (tableau 3.1). peut être exploité. Il en est de même pour la viscosité (tableau 3.2). Les modèles ci-dessus ont été calés par "curve fitting".

TABLEAU 3.1 Résultats d'isothermes DSC[90]

Paramètre de α					
Isotherme en ° C	$A_1(min^{-1})$	$A_2(min^{-1})$	B_1	E_1	E_2
188	$3.14x10^9$	$7.71x10^2$	1	$9.75x10^4$	$3.69x10^4$
182	$5.65x10^9$	$1.03x10^3$	1.03	$9.96x10^4$	$3.78x10^4$
177	$5.41x10^9$	$1.09x10^3$	1.05	$9.89x10^4$	$3.84x10^4$
171	$7.90x10^9$	$1.54x10^3$	0.94	$1x10^5$	$3.85x10^4$
160	$9.36x10^9$	$1.78x10^4$	0.93	$1x10^5$	$4.69x10^4$
149	$1.47x10^{10}$	$2.10x10^3$	0.85	$1.01x10^5$	$3.88x10^4$

TABLEAU 3.2 Résultats d'isothermes : Mesures Rhéomètrie[90]

Paramètre de η					
Isotherme en $^\circ$	$A_\mu(Pa.S)$	$E_\mu(KJmol^{-1})$		B	α_g
188	281.3	14.37	4.29	-9.32	0.42
182	78.70	17.52	4.59	-9.14	0.44
177	274.35	14.23	4.02	-8.27	0.43
171	85.20	18.11	4.12	-8.96	0.41
160	264.24	14.47	3.26	-6.50	0.44
140	332.51	14.16	2.70	-5.24	0.44

3.4.1 Approximation :Temps caractéristiques du système

Vu la dimension des plaques (surface et épaisseur), nous calculerons certains paramètres de temps caractéristiques pour ensuite négliger/découpler certains phénomènes. L'équation thermochimique de la résine s'écrit :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{k}{\rho C_p}\frac{\partial}{\partial z}\frac{\partial T}{\partial t} + \frac{H_r}{C_p}\frac{\partial \alpha}{\partial t}$$

Le degré de cuisson est régi par

$$\frac{d\alpha}{dt} = Ae^{\frac{E}{RT}}f(\alpha)$$

On définit les temps caractéristiques suivants : Le temps moyen t_c de diffusibilité thermique à travers l'épaisseur H,$H_c = \frac{H}{2}$

$$t_c = \frac{H_c^2}{\frac{k}{\rho C_p}}$$

Le temps moyen t_r de réaction chimique

$$t_r = \frac{1}{A}e^{\frac{E}{R(T_0+\Delta T_c{}^{-1})}}$$

On définit durant la phase de cuisson la température de la réaction ΔT_a

$$\Delta T_a = \frac{H_r}{C_p}$$

Le nombre de Damköhler D_a est le rapport entre : la cinétique de température de réaction et Cinétique de température de cuisson.

$$D_a = \frac{\frac{\Delta T_a}{t_r}}{\frac{\Delta T_c}{t_c}} = \frac{\Delta T_a}{\Delta T_c}\frac{t_c}{t_r}$$

Avec les données cinétiques de la résine époxy $977-2$ [90] :
$\frac{t_c}{t_r} \sim 10^{-5} \ll 1 \Longrightarrow$ Un degré de cuisson uniforme dans le composite
$D_a \sim 10^{-8} \Longrightarrow$ Un découplage température et cuisson : l'exothermie de la résine est négligeable

3.4.2 Simulations : Validation des modèles de η ,α

Grâce aux idées introduites par Atarsia.et Boukhili [54],et le modèle de Springer-Loos [5] utilisé pour chaque palier de cuisson , nous pouvons quantifier par mapping de cuisson, le degré de cuisson pour un cycle de cuisson donné voir Annexe. Une vérification de la formulation a été faite (figure3.29) en se servant de la mesure du degré de cuisson pour un cycle donné par Soltani[90] et notre modèle.De même la figure 3.30 propose une comparaison de viscosité entre le schéma donné dans la fiche technique de la résine et le modèle de Kenny [28] utilisé.

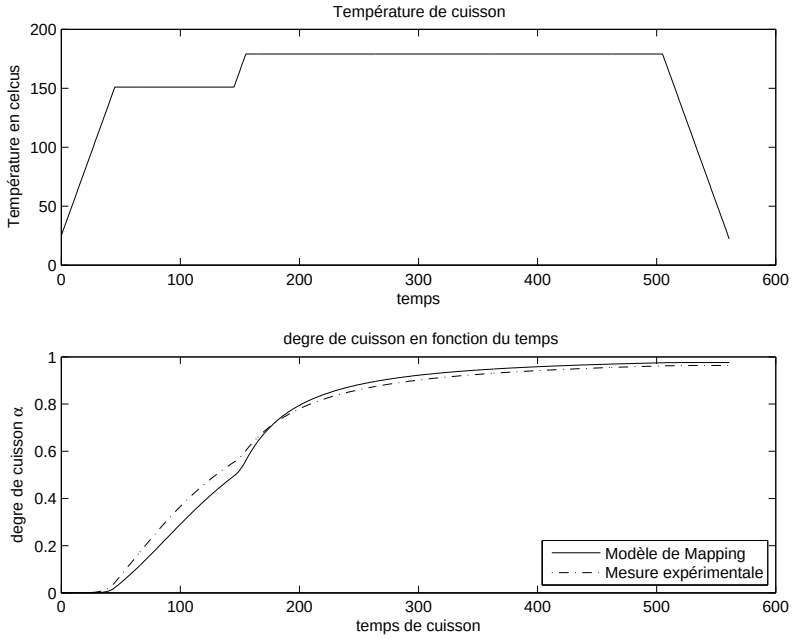
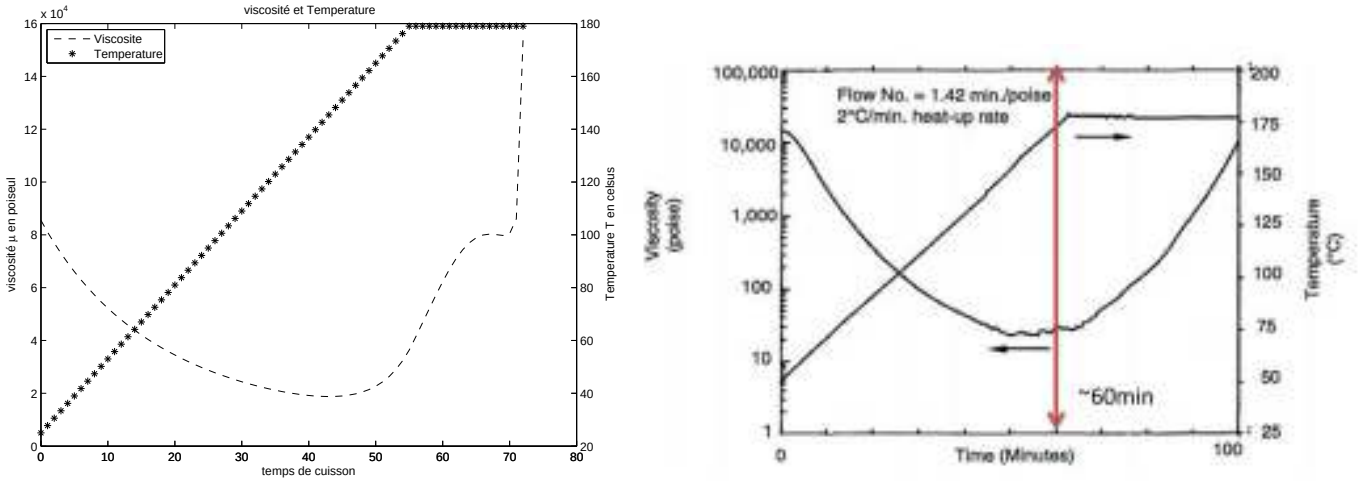


FIGURE 3.29 Validation du modèle du degré de cuisson suivant un cycle complexe



(a) Modèle de viscosité de Springer (b) Fiche technique 977-2

FIGURE 3.30 Comparaison entre le modèle de viscosité déduit (de Kenny [28])et celle de la fiche technique [88]

3.4.3 Résultats numériques et discutions

3.4.3.1 Diagnostique du cycle nominal proposé par Cytec

Le cycle original de Cytec illustré à la figure3.31 fait état d'une simultanéité entre l'évolution de la pression et de la température. La simulation de l'évolution des porosités avec le cycle nominal de Cytec est illustrée à la figure3.32. Nous remarquons une chute de la composante thermomécanique de porosité qui est inversement proportionnelle à l'augmentation de la pression. Lorsque la pression devient constante, à température croissante, il y a une légère augmentation de la composante thermomécanique. À température et pression constante, l'évolution de la composante thermomécanique devient constante jusqu'au temps de gel de la résine.
La composante diffusive quant à elle augmente durant tout le cycle jusqu'au temps de gel.

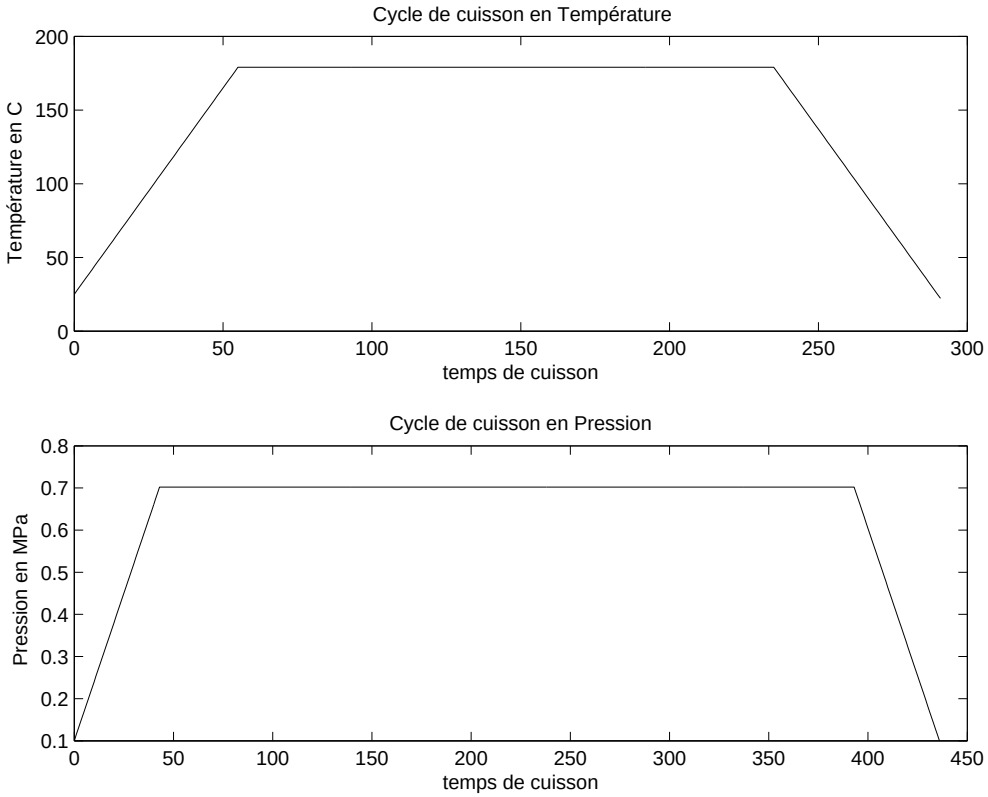


FIGURE 3.31 Cycle de cytec [88]

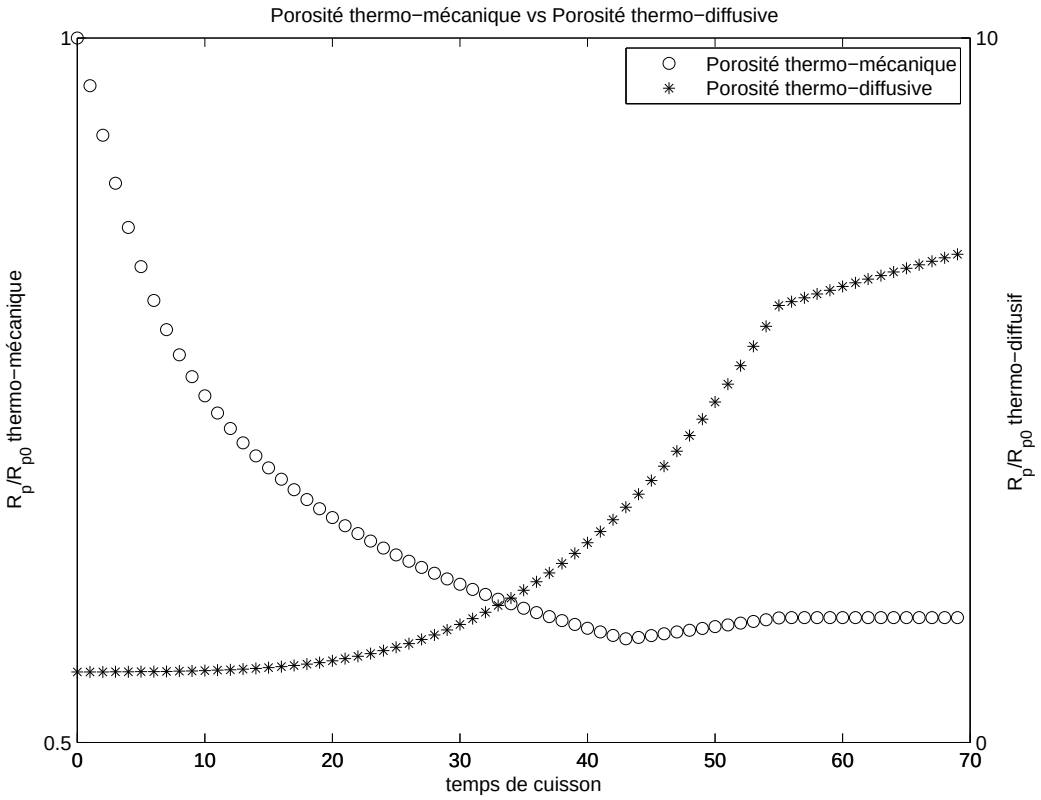


FIGURE 3.32 Évolutions des porosités thermomécaniques et thermodiffusives avec le cycle de Cytec

3.4.3.2 Effet de brisure en palier du cycle en température

Nous avons réalisé respectivement deux brisures en palier du cycle de température appelées premier dwell respectivement à $160°C$ et à $140°C$.La figure3.33 représente trois divers cycles dont seul le profile de température varie selon le niveau du premier dwell. L'effet de ces brisures se situe quasi essentiellement comme le montre la figure 3.34 sur la composante diffusive de la porosité. Cependant, on retiendra (voir figure 3.34) que plus le niveau de brisure (premier dwell) est bas et plus la porosité diffusive augmentera.

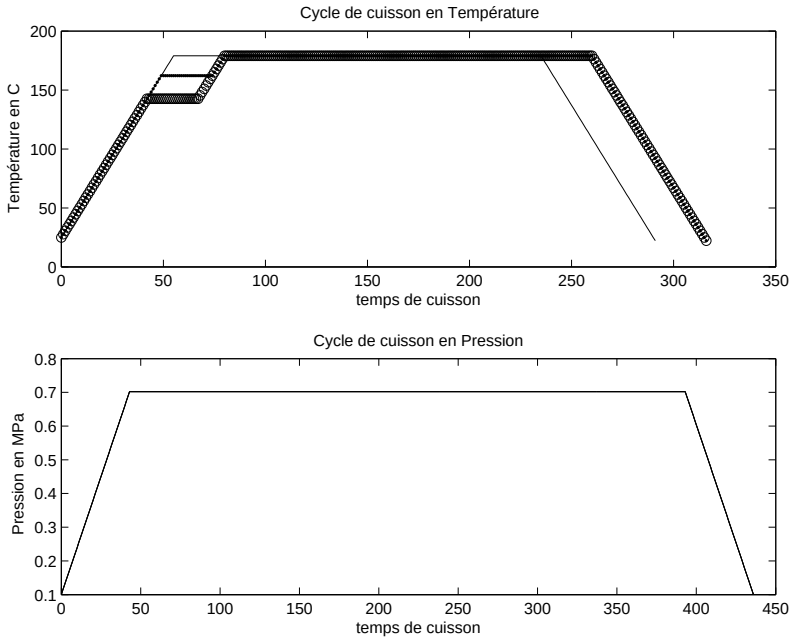


FIGURE 3.33 Cycles brisés en température

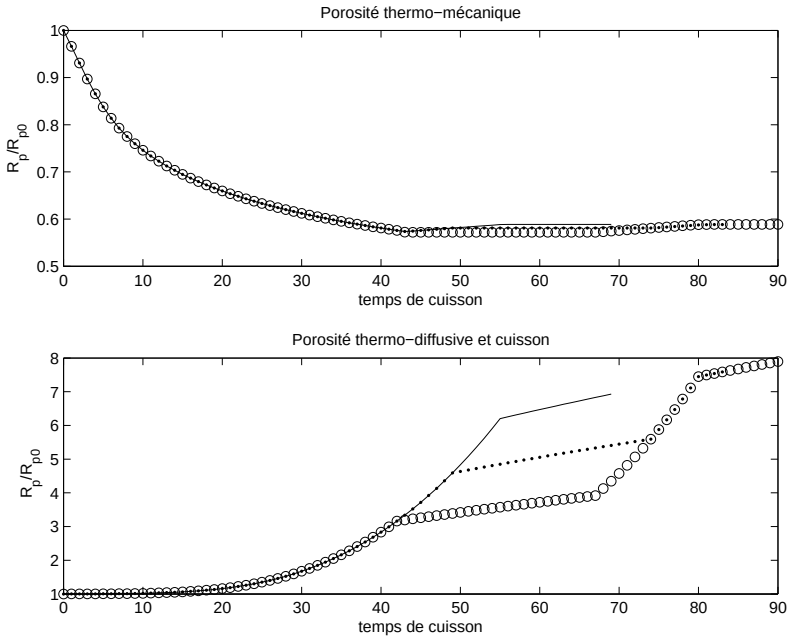


FIGURE 3.34 Évolution de porosités

3.4.3.3 Effet d'un retard de pression

On introduit retard de pression, décalé d'une vingtaine de minutes par rapport à la température (figure 3.35). Il apparaît comme l'indique la figure 3.36 que l'influence de la pression se fait ressentir au niveau de la composante thermomécanique.Ce qui est évident, car plus la pression est retardée et plus la porosité grossira, la résine tendant vers le gel empirera la situation finale de porosités.

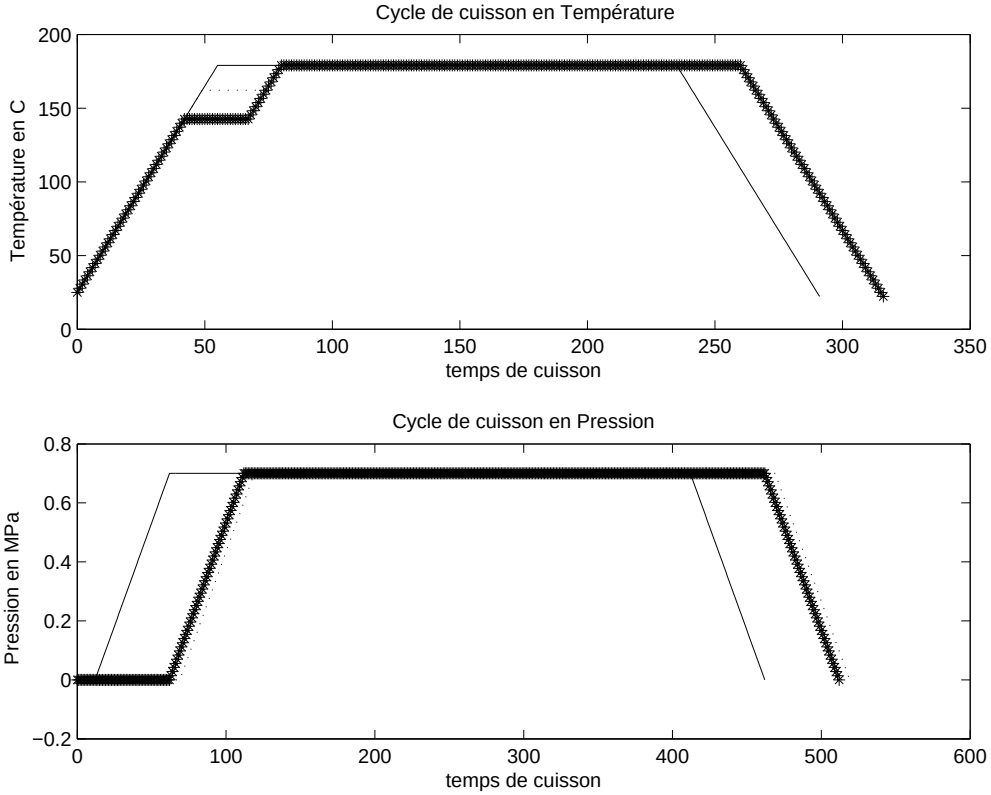


FIGURE 3.35 Cycle brisé avec retard de pression

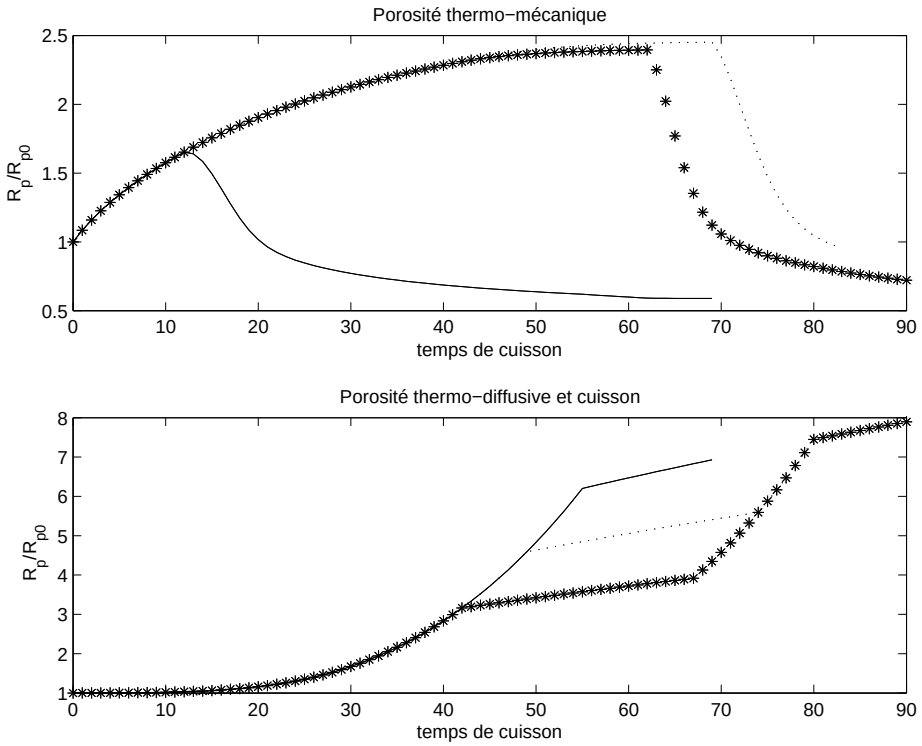


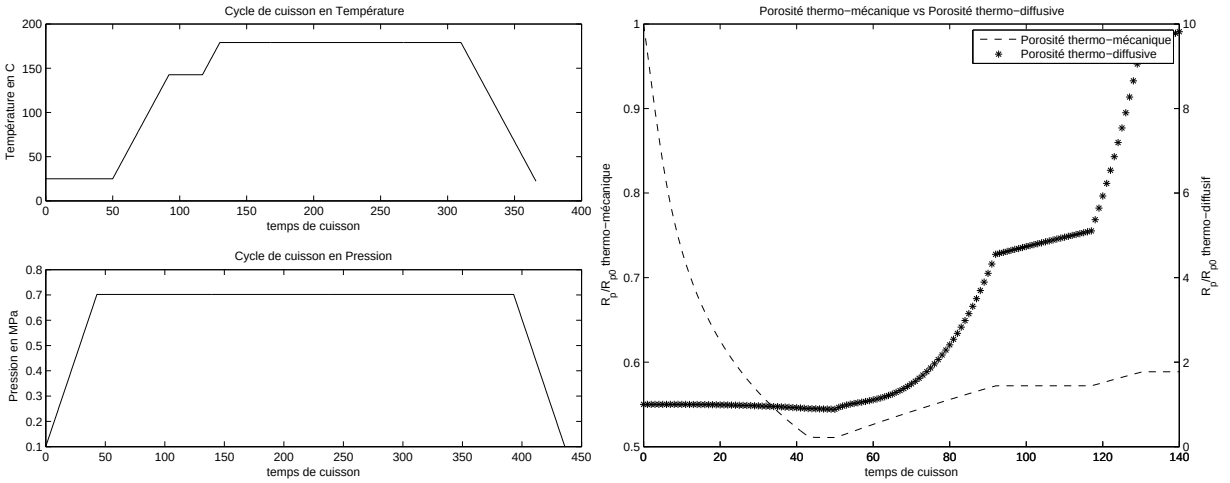
FIGURE 3.36 cycle brisé avec retard de pression : Évolution de porosités

3.4.3.4 Explications des effets combinés de température et de la pression

En Posant $R_m(t)$ et $R_b(t)$ respectivement le rayon de la porosité thermomécanique et de la porosité thermodiffusive, les conclusions suivantes sont tirées à partir de la figure 3.37.

∗ Évolution de porosités thermomécaniques $R_m(t)$
- $P \nearrow$ et T constantes $\Longrightarrow R_m(t) \searrow \sim \frac{1}{t}$
- P constante et $T \nearrow \Longrightarrow R_m(t) \nearrow$ [2]

∗ Évolution de porosités thermodiffusives $R_b(t)$
- P et T constantes $\Longrightarrow R_b(t) \nearrow \sim \sqrt{t}$
- P constante $T \nearrow \Longrightarrow R_b(t) \nearrow \sim e^T$
- T constante $P \nearrow \Longrightarrow R_b(t) \searrow$ [3]



(a) Cycle de cuisson en température et pression (b) Évolution de porosités thermomécaniques et thermodiffusives

FIGURE 3.37 Influence du cycle de cuisson sur l'évolution de porosités

3.4.3.5 Processus de design et optimisation de cycle de cuisson

Dans le design de cycle de cuisson, il existe trois paramètres principaux que sont : le temps du premier dwell de température t_1 sa durée d_1, son niveau T_1, et le temps d'application de la pression

∗ **Rôle du dwell de température :** le premier dwell de température est le siège de croissance de porosités surtout diffusives. Cependant, l'importance du dwell se situe au niveau du taux volumique de fibres. En effet la viscosité devient assez basse pour "squeezer"(chasser) la résine du composite afin d'augmenter la quantité du taux de fibres.

2. lois Boyle-Mariotte
3. lois Boyle-Mariotte

Ceci est bien décrit par Dave et Loos [91] sur la figure3.38.
Question porosité, il apparaît que le dwell influence plus la composante diffusive de la porosité.

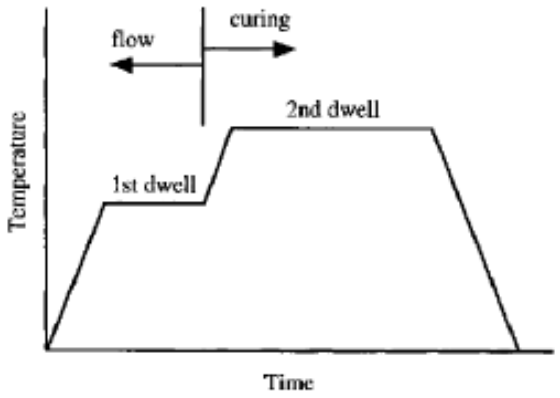


FIGURE 3.38 Design de cycle

∗ **Rôle de la pression :** l'influence de la pression est la réduction au maximum des porosités mécaniques. Une chose est sûre, cette pression doit être maximale au niveau du dwell de température pour augmenter au maximum le taux de fibres V_f. Le temps d'application de la pression influe légèrement sur la porosité mécanique. Cependant, une pression constante avec une température croissante n'est pas conseillée car permet une croissance de porosités.Avec ces concepts, nous avons conçu un cycle avec retard de pression et présence de dwell dont les résultats figurent sur le tableau 3.3 ci-dessous.

TABLEAU 3.3 Cycle de cuisson optimal mode primaire A

Retard de pression avec présence d'un dwell			
cycle	Épaisseurs	V_f	*vide*
nominal	M [a] = 3.34	M=58%	M= 0.6%
	E-T [b] =8%	E-T=2.7%	E-T=0.6%
	E-M [c] =1.7%	E-M= =5.1%	vide Max=3.3%
Optimal	M = 3.32-	M=59.7%	M = 0.6%
	E-T=10%	E-T=1.96	E-T=0.5%
	E-M=0.95%	E-M=4.7%	vide Max=1.8%

a. Moyenne
b. Écart Type
c. Écart Moyen

CONCLUSION

Dans ce travail nous avons présenté une étude expérimentale et numérique de l'évolution des propriétés physiques d'un composite carbone époxy suivant le mode opératoire du procédé RFI

Synthèse des travaux

L'origine des porosités dans le procédé RFI peut être rangée en deux grandes familles :

⋆ L'une liée au mode de drapage

⋆ L'autre au cycle de cuisson

⋆ **Mode de drapage :** à cycle de cuisson constant, la position du film de résine dans le laminé initial joue un rôle majeur dans la formation de porosités. Deux modes de drapage principaux ont été introduits :
∗ Le premier appelé mode primaire est lié à la position du film de résine dans le drapage du laminé. On distingue les modes A,B, C et D.
∗ Le second est appelé mode secondaire et concerne uniquement la répartition du film de résine dans le plan de la couche de fibre. On distingue le mode secondaire AA à faibles gaps et overlaps et AB, à forts gaps et overlaps. Les modes secondaires s'appuient sur le mode primaire A. Les modes secondaires permettent d'analyser une situation courante liée à la masse de résine à injecter qui se traduit dans la majorité des cas par la présence de gaps et overlaps locaux.

De ces études il apparaît que le mode primaire A avec le film de résine en bas permet une meilleure fabrication avec un taux de vide contrôlé ainsi que des épaisseurs et taux de fibres fiables V_f. Le mode primaire B quant à lui permet un meilleur design au niveau du taux de vide, mais est le siège d'épaisseurs irrégulières et de faibles taux de fibres V_f. Le mode primaire C quant à lui se révèle inacceptable, car présente quelques maximums locaux de taux de vide de l'ordre de 11% cela est dû au fait que les films de résine prennent en sandwich les fibres de carbone, emprisonnant par la même occasion une importante couche d'air.Enfin le mode primaire D présente le meilleur compromis entre taux de vide et taux de fibres. Seule la régularité des épaisseurs présente un manque à gagner par rapport au mode primaire A.Il en ressort que le mode primaire A et D sont les plus optimaux. La

présence de gaps et overlaps intuitivement conduit à des irrégularités d'épaisseurs/taux de fibres.Il faut donc les éviter autant que possible. Par ailleurs les faibles gaps et overlaps (inférieurs à $1''$) ne sont pas tant nuisibles et contribuent même à faire baisser légèrement le taux de vide local. L'observation au C-scan permet d'attribuer la majorité des défauts aux overlaps de résine.

⋆ **Mode de cuisson :** l'analyse du cycle de cuisson fait état qu'une certaine amélioration peut être faite en jouant sur les paliers de température et aussi sur l'instant d'application de la pression.C'est dans ce sens que le cycle du fabricant Cytec peut encore être amélioré.Des modèles de formations de porosités thermodynamiques (mécaniques et diffusives) nous ont permis d'élucider certains comportements :quelques grandes observations que voici sont à rappeler :En Posant $R_m(t)$ la porosité thermomécanique et $R_b(t)$ celle thermodiffusive on peut écrire :

- $P \nearrow$ et T constante $\Longrightarrow R_m(t) \searrow\sim \frac{1}{t}$
- P constant et $T \nearrow \Longrightarrow R_m(t) \nearrow$ [4]
- P et T constants $\Longrightarrow R_b(t) \nearrow\sim \sqrt{t}$

- P constant $T \nearrow \Longrightarrow R_b(t) \nearrow\sim e^T$

- T constant $P \nearrow \Longrightarrow R_b(t) \searrow$ [5]

Le phénomène de diffusion ne dépend que de la quantité d'eau initiale à l'intérieur de la résine. Il serait donc judicieux de bien conserver le film de résine. Le fabricant Cytec pourrait revoir le conditionnement du film de résine, à la lumière de celui des préimprégnés.

Pour confectionner un bon cycle de cuisson, il faut tenir compte de ces remarques : la présence d'un dwell de température permet d'évacuer le maximum de résine pour augmenter la fiabilité des épaisseurs et le taux volumique de fibres V_f. Dans ce sens nous avons pu démontrer que le cycle de Cytec n'était ni optimal en V_f ni en taux de vide pour le procédé RFI.

Limitations des résultats

Les limitations des solutions proposées sont doubles :

∗ Le nombre de plis du laminé, ainsi que l'effet dimensionnel, car il s'agit dans notre étude

4. lois Boyle-Mariotte
5. lois Boyle-Mariotte

de plaques plane
∗ Le film de résine utilisé n'était pas conservé sous vide, ce qui favorisait la prise d'humidité à chaque dégel empirant ainsi le phénomène de diffusion lors des différentes fabrications.Cela n'altère en aucun cas la validité des résultats, car les plaques du mode primaire ont été fabriquées en même temps, il en est de même pour les plaques du mode secondaire.En plus avec un taux d'humidité croissant nous avons pu fabriquer à l'aide d'un cycle optimal la meilleure plaque en terme de propretés physiques.

Améliorations futures

Une étude hygrométrique du film de résine peut permettre d'évaluer les conditions optimales de conservation. Nous pouvons aussi améliorer le cycle par l'introduction de principe automatique de contrôle-régulation. Nous aurons donc en ce sens une méthode de fabrication intelligente. Il faudra donc modéliser la porosité et le taux de fibres comme des fonctions d'états du système.Le cycle étant la commande.

Références

[1] T.Astrom : *Manufracturing of Polymer Composites.* Chapman and Hall, London, 1997.

[2] M.Schwartz : *Composite Materals II :Processing Fabrication and Applications.* 1996.

[3] S.G. Advani et E.Murat Sozer : *Process Modeling in Composites Manufacturing.* Marcel.Dekker,Inc, 2003. ISBN 0-8247-0860-1.

[4] P.K. Mallick : *Fiber-Reinforced Composites.* Fiber-Reinforced Composites CRC press, 2007. ISBN 0-13-066102-3.

[5] P. R.Ciriscioli et G. S.Springer : *Smart Autoclave Cure of Composites.* Technomic Publishing Company Inc., 1990. ISBN 87762-802-5.

[6] P.Legay : Étude de l'impact de défauts sur les propriétés mécaniques de matériaux composites fabriqués par le procédé de placement de fibres. Mémoire de D.E.A., École Polytechnique de Montréal, 2011.

[7] P. WANG : *Étude numérique et expérimentale de procédé d'élaboration des matériaux composites par infusion de résine.* Thèse de doctorat, École Nationale Sup'erieure des Mines de Saint-Etienne, 2006.

[8] P. Celle : *Couplage fluide / milieu poreux en grande déformations pour la modélisation des procédés d'élaboration par infusion.* Thèse de doctorat, École Nationale Sup'erieure des Mines de Saint-Etienne, 2006.

[9] ESI Group et Ecole Polytechnique de Montréal : Manuel Pro-Flot. 2005.

[10] Henry Darcy : *Les Fontaines publiques de la ville de Dijon.* Dalmont, 1856.

[11] B.T. Astrom, R.B. Pipes et S.G. Advani : On flow through aligned fiber beds and it's application to composites processing. *J.Comp.Mater*, vol. 26:pp. 1351–1373, 1992.

[12] P. B. Nedanov et S.G.Advani : A method to determine 3d permeability of fibrous reinforcements. *Journal of Composite materials*, vol. 36, 2002.

[13] M.V.Bruschke et S.G.Advani : Flow of generalized newtonian fluids across a periodic array of cylinders. *J.Rheology*, vol. 37:pp. 479–498, 1993.

[14] P. B. Nedanov, S.G.Advani, S. W. Walsh et W. O. Ballata. : Determination of the permeability tensor of fibrous reinforcements for VARTM. *ASME*, 1999.

[15] J. M.Kenny : Application of Modeling to the Control and Optimization of Composite Processing. *Composite Structures*, vol. 27:pp. 129–139, 1994.

[16] M.L.Williams, R.L. Landel et J.D.Ferry : Extentons of the rouse theory of viscoelastic properties to undiluted linear polymers. *J.Appl. Phys*, vol. 26(359):pp. 3701, 1955.

[17] W.M. Sanford et R. LMcCullough. : Free-Volume Approach to Thermoset Cure. *Journal of Polymer Science :Part B : Polymer Physics*, vol. 28:pp. 973–1000, 1990.

[18] J. B. Enns et J. K.Gillham : Time-Temperature-Transformation (TTT) Cure Diagram : Modeling the Cure Behavior of Thermoset Cure. *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 28:pp. 2567–2591, 1983.

[19] G.Wisanrakkit, J.K.Gillham et J.B. Enns : The Glass Transition Temperature (Tg) as a parameter for Monitoring the Cure of an Amine/Epoxy System at Constant Heating Rates. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics*, vol. 41:pp. 1895–1912, 1990.

[20] D.R. Miller et C.W.Macosko : Average Property Realtions for Nonlinear Polymerizarion with Unequal Reactivity. *Macromolecules*, vol. 11(4):pp. 656–662, 1978.

[21] C.W.Macosko et D.R.Miller : A New Derivation of Post-gel Properties Network Polymer. *Macromolecules*, vol. 9(268), 1976.

[22] P. R. Ciriscioli, Q. Wang et G. S. Springer : Autoclave Curing-Comparisons of Model and Test Results. *Journal of Composite Materials*, vol. 26(1):pp. 90–102, 1992.

[23] J. T. Tzeng et A.C. Loos : A Cure Analysis for Axisymetric Composites. *Composite Manufacturing*, vol. 4(3):pp. 157–165, 1993.

[24] T.E. Twardowski, S.E. Lin et P.H.Geil : Curing in Thick Composite Laminates Experiment and Simulation. *Journal of Composite Materials*, vol. 27(3):pp. 216–250, 1993.

[25] A.M.Srolin, A.G.Merzhanov et A.Ya. Malkin : Non-Isothermal Phenomena. *Polymer Engineering and Science*, vol. 19(15):pp. 1074–1080, 1979.

[26] D. S. Kim et S. C. Kim : Rubber Modified Epoxy-Resin : Cure Kinetics and Chemorheology. *Polymer Engineering and Science*, vol. 34:pp. 625–631, 1994.

[27] D.S. Lee et D. H. Chang : A Chemorheological Model for the Cure of unsaturated polyester resin. *Polymer Engineering and Science*, vol. 27(13):pp. 955–963, 1987.

[28] J.M. Kenny, A.Maffezzoli et L.Nicolais : A Model for the Thermal and Chemorheology Behavior of Thermosits (II) : Unsaturated Polyester Based Composites. *Composite Science and Technology*, vol. 38:pp. 339–358, 1990.

[29] J.F. Stevenson : Free radical polymerization models for simulating reactive processing. *Poly.Eng.Sci*, vol. 26:pp. 746–759, 1986.

[30] A.M. Youssefi : *Cure analysis of promoted polyester and vinylester reinforced composites and heat transfer in RTM molds.* Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal, 1997.

[31] V.N. Romero-Gonzalez et N. Casillas : Isothermal and temperature programmed kinetic studies of thermosets. *Poly.Eng.Sci*, vol. 29:pp. 295–301, 1989.

[32] V. Calado et S.G. Advani : *Thermosett resin cure kinetics and rheology. In Loos and Raju Dave.* 2000.

[33] R.B. Prime et E.Sacher : The kinetics of epoxy cure :2. the system bisphenol-A diglicidyl ether/polyamide. *Polymer*, vol. 13:pp. 455–458, 1972.

[34] W. Jang : A review of DSC kinetic methods Internal report. *DuPont Instruments*, 1993.

[35] S. Sourour et M. Kamal : Differential scanning calorimetry of epoxy cure : isothermal cure kinetics. *Thermochemica Acta*, vol. 14:pp. 41–59, 1976.

[36] C.D. Han et K.W Lem : Chemorheology of thermoseting resins. I. the chemorheology and curing kinetics of unsaturated polyester resin. *Appl.Poly.Sci.*, vol. 28:pp. 3155–3183, 1983.

[37] G.O. Piloyan, I.D. Ryabchikov et O.S. Novikova : Determination of activation energies of chimical reactions by differential thermal analysis. *Nature*, vol. 212: pp. 1229, 1966.

[38] A. Dutta et M.E. Ryan : Effect of fillers on kinetics of epoxy cure. *Appl.Poly.Sci.*, vol. 24:pp. 635–649, 1979.

[39] M.E. Ryan et A. Dutta : Kinetics of epoxy curw : a rapid technique for kinetic parameter estimation. *Polymer*, vol. 20:pp. 203–206, 1979.

[40] C.D. Han et D.S. Lee : Analysis of the curing behavior on unsaturated polyester resins using free radical polymerization. *Appl.Poly.Sci.*, vol. 33:pp. 2859–2876, 1987.

[41] C.D. Han et K.W. Lem : Chemorheology of thermosetting resins. IV. The chemorheology and curing kinetics of vinyl ester resins. *Appl.Poly.Sci.*, vol. 29:pp. 1879–1902, 1984.

[42] J. Mijovic et C.H. Lee : A comparison of chemorheological models for thermoset cure. *Appl.Poly.Sci.*, vol. 38:pp. 2155–2170, 1989.

[43] E. Ghazali, X. Bertran et D. Denu et coll. : Thermoset matrix composite processing by speedy polymerisation : numerical modelling of thermo-kinetic coupling. *Comptes Rendus des JNC-Poitiers* , vol. 17, 2011.

[44] H.J. Borchardt et F. Daniels : The application of differential thermal analysis to study of reaction kinetics. *Journal of AM. Chem. Soc*, vol. 79:pp. 41–46, 1957.

[45] M.J. Richardson : *Developments in polymer Characterization ed. J.V. Dawkins chapter 7 Applied Science*. LTD„ 1978. ISBN 0-13-066102-3.

[46] S.L. Boersma : *J.Amer.Cer. Soc.*, vol. 38:pp.281, 1955.

[47] E.S. Watson, M.J. O'Neill, J. Justin et N. Brenner : *Anal. Chem*, vol. 36: pp.1233, 1964.

[48] M.J. O'Neill : *Anal. Chem*, vol. 36:pp.1238, 1964.

[49] S. Sourour et M. Kamal : A new apparatus to measure the thermal conductivity and diffusivity of thermoplastic and thermosetting polymers. *Appl. Poly.Eng.Sci*, vol. 16:pp. 480–489, 1976.

[50] S.Y. Pusatcioglu, A.L. Fricke et J.C Hassler : Variation of thermal conductivity and specific heat during cure thermoset polyesters. *Appl. Poly.Eng.Sci*, vol. 24:pp. 947–952, 1979.

[51] R.B. Prime : Differential scanning calorimetry of the epoxy cure reaction. *Appl. Poly. Eng.Sci*, vol. 13:pp. 365–371, 1973.

[52] C.D. Han et H.B. Chin : Development of a mathematical model for the pultrusion of unsaturated polyester resin. *Appl. Poly. Eng.Sci*, vol. 28:pp. 321–332, 1988.

[53] R.A. Fava : Differential scanning calorimetry of epoxy resins. *Polymer*, vol. 9:pp. 137–151, 1972.

[54] A. Atarsia et R. Boukhili : Relationship between isothermal and dynamic cure of thermosts via the isoconversion representation. *Polymer Engineering and science*, vol. 40, 2000.

[55] E. Ruiz et C. Billotte : Predicting the cure of thermosetting polymers : the isoconversion map. *Polymer composite*, vol. 10:pp. 1450–1457, 2009.

[56] D.J. David : *J.Thermal Anal*, vol. 3, 1971.

[57] T.G. Gutowski : *Advanced Composites Manufacturing.* John Wiley and Sons Inc., 1997.

[58] K. Terzaghi : *Theoretical soil mechanics.* John Wiley and Sons Inc., New york, 1965.

[59] E.M. Sozer, B. Chen, P.J. Graham et coll. : Characterization and Prediction of Compaction Force and Preform Permeability of Woven Fabrics During the Resin Transfer Molding Process. *In Proceedings of the Fifth International Conference on Flow Processes in Composite Materials*, pages pp. 25–36, Plymouth, U.K., July .

[60] B. Chen, A.H. Cheng et T. W. Chou : A nonlinear compaction model for fibrous oreforms.Compos Part A. *Appl Sci Manufact.*, vol. 32(701):7, 2001.

[61] B. Chen et T. W. Chou : Compaction of woven-fabric preforms in liquid composite molding processes : single-layer deformation. *Compos Sci. Technol.*, vol. 59(1519):26, 1999.

[62] Z. Cai et T. Gutowski : 3-d defomation behqvior of q lubricqted fiber bundle. *Journal of Composite Materials*, vol. 26(8):pp. 1207–1237, 1992.

[63] J.A.Roux R.Shanku, J.G.Vaughan : Rheological characteristics and cure kinetics of EPON 862/W epoxy used in pultrusion. *Advances in Polymer Technology*, vol. 16: pp. 297–311, 1997.

[64] V. Pillai, A. N. Beris et P. Dhurjati : Heuristics guided optimization of a batch autoclave curing process. *Computers chem. Eng.*, vol. 20(3):pp. 275–294, 1996.

[65] G. Mychajluk, S. Manoochehri et R. S. Parnas : Resin Transfer Molding Process Optimization for Minimum Cycle-Time. *Journal of Advanced Materials.*

[66] P. Olivier et J.P. Cottu : Modelling the cure of thermoset matrix composites. *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Mechanik*, vol. 80(1):pp. S201–S204, 2000.

[67] N. Rai et R. Pitchumani : Rapid Cure Simulation Using Artificial Neural Networks. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 28:pp. 847–859, 1997.

[68] H. Schoeller : *Hydrogéologie*, volume 2. Ecole Nationnale Supérieur du Pétrole, Technip, 1955.

[69] E. Ruiz, V. Achim, S. Soukane et F. Trochu : Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites. *Composites Science and Technology* , vol. 66:pp. 475–486, 2006.

[70] J.S. Leclerc et E. Ruiz : Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* , vol. 39 (12):pp. 1859–1868, 2008.

[71] L. Labat, J. Bréardn, S. Pillut-Lesavre et G. Bouquet : Void fraction prevision in LCM parts. . *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 16 (2):pp. 157–164, 2001.

[72] N. Patel et L.J. Lee : Modeling of void formation and removal in liquid composite molding. Part I : wettability analysis. *Polymer composites*, vol. 17(1):pp. 96–103, 1996.

[73] W.D. Kingery, K. Bowen et D.R. Uhlmann : *Introduction to ceramics*, volume 2. Wiley-Interscience publication 2nd Edition, 1975. ISBN 0-471-47860-1.

[74] V. Frishfelds, T.S. Lundström et A. Jakovics : Bubble motion through non-crimp fabrics during composites manufacturing. *Composites Part A*, vol. 39 (2):pp. 1243–251, 2008.

[75] S. Veesler, D. Mangin et F. Puel : Cristallisation. *Technique de l'ingénieur Nucléation* .

[76] J. Bruchon : *Etude de la formation d'une structure de mousse par simulation directe de l'expansion de bulles dans une matrice liquide polymère.* Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, , 2004.

[77] J. L. Kardos, M. P. Dudukovic, E. L. McKague et M. W. Lehman : Void Formation and Transport During Composite Laminate Processing - An Initial Model Framework. *797 ASTM Special Tech Productivity and Quality Assurance of Composite Materials*, pages pp. 96–109, 1982.

[78] J.L. Kardos et M.P. Dudukovic : Void growth and resin transport during processing of thermosetting matrix composites. *Advances in Polymer Science*, vol. 80:pp. 101–123, 2008.

[79] Y. LEDRU : *Etude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques.* Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 2009.

[80] H. Yoshida, T. Ogasa et R. Hayashi : Statistical approach to the relationship between ILSS and void content of CFRP. *Composites Science and Technology*, vol. 25: pp. 3–18, 1986.

[81] L. Liu, B. Zhang et D. Wang : oid content in carbon/epoxy composites and its effects on flexural properties.

[82] B.D. Harper, G.H. Staab et R.S. Chen : A note on the effects of voids upon the hygral and mechanical properties of AS4/3502 Graphite/Epoxy. *Journal of Composite Materials*, vol. 21:pp. 280–289, 1987.

[83] L. Liu, B. Zhang, Z. Wu et D.Wang : Effects of cure pressure induced voids on the mechanical strength of carbon/epoxy Laminates. *J.Mater.Sci.Technol.*, vol. 21 (1):pp. 87–91, 2005.

[84] S.R. Ghiorse : Effect of void content on the mechanical properties of carbon/epoxy laminates. *SAMPE Quarterly*, vol. 24(2):pp. 54–59, 1993.

[85] M.J. Yokota : Process controlled curing of resin matrix composites. *Sample Journal*, vol. 14(2):pp. 11–17, 1978.

[86] B. Zhang, L. Liu et D. Wang : Influences of processing conditions on porosity for the autoclave cure of composites. *In SAMPE Quarterly*, pages pp. 16–20, Long Beach, UNITED STATES, 16-20 Mai 2004.

[87] F.Y.C. Boey et S.W. Lye : Void reduction in autoclave processing of thermoset composites. *Composites*, vol. 23(4):pp. 261–265, 1992.

[88] Cytec Engineered Materials : 977-2 epoxy resin system technical Data sheet Rev 01. Rapport technique, Cytec Industrie, 2012.

[89] G. Matheron : Principles of Geostatistics. *Economic Geol*, vol. 58:pp. 1246–1268, 1963.

[90] S.Soltani : Thermal Rheological and mechanical properties of a polymer composite cure at staged cure cycles. Mémoire de D.E.A., Wichita University, 2010.

[91] R.S. Dave et A.C. Loos : *Processing of composites*. Hanser Gardner 1st Ed, 1999.

Annexe 1 : Krigeage 2D

On suppose la fonction G représentant la propriété mesurée, G est de nature probabiliste dont les réalisations $G(x_i, y_i)$ sont des propriétés locales de l'espace aux points $P_i(x_i, y_i)$. le modèle probabiliste de la variable aléatoire G est :

$$G(x, y) = a(x, y) + w(x, y)$$

$a(x, y)$ est appelé dérive et représente la valeur moyenne
$w(x, y)$ représente les fluctuations autour cette valeur moyenne.
Le krigeage s'effectue en deux étapes :

Estimateur linéaire sans Biais Connaissant les $G(x_i, y_i)$ pour $i \in [1\ N]$ on considère alors un estimateur $U_{x,y}$

$$U_{x,y}\left(G(x_1, y_1), G(x_2, y_2), ...G(x_N, y_N)\right) = \sum_{i=1}^{N} \lambda_i(x, y) G(x_i, y_i)$$

Les conditions de non-biais s'écrivent donc :

$$E\left[U_{x,y}\left(G(x_1, y_1), G(x_2, y_2), ...G(x_N, y_N)\right)\right] = E\left[G(x, y)\right]$$

La moyenne étant linéaire, il apparaît donc

$$\sum_{i=1}^{N} \lambda_i(x, y) E\left[G(x_i, y_i)\right] = E\left[G(x, y)\right]$$

Minimisation de la variance de l'erreur L'idée est de minimiser la variance de l'erreur avec les variables $\lambda_i(x, y)$
soit $\epsilon_{x,y}$ l'erreur d'estimation.

$$\epsilon_{x,y} = U_{x,y}\left(G(x_1, y_1), G(x_2, y_2), ...G(x_N, y_N)\right) - G(x_i, y_i)$$

$$Var\left(\epsilon_{x,y}\right) = E\left[\left(\epsilon_{x,y} - E\left[\epsilon_{x,y}\right]\right)^2\right]$$

Les développements donnent :
$Var\left(\epsilon_{x,y}\right) = \sum_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{N} \lambda_i(x, y)\lambda_j(x, y)) E\left[G(x_i, y_i)G(x_j, y_j)\right]$
$- 2\sum_{i=1}^{N} \lambda_i(x, y) E\left[G(x_i, y_i)G(x, y)\right] + E\left[\left(G(x, y)\right)^2\right]$.

L'idée du krigeage sera donc de trouver le couple $(\lambda_1, \lambda_2 ... \lambda_N) \in \mathcal{R}^N$ qui minimise $Var(\epsilon_{x,y})$ sous la contrainte de non-biais. Pour simplifier la formulation, deux hypothèses ont été introduites : l'une fondamentale et l'autre intrinsèque

l'hypothèse fondamentale qui représente le phénomène sous forme d'une valeur moyenne appelée dérive, entourée d'une fluctuation ou bruit blanc.

$$G(x,y) = \underbrace{a(x,y)}_{derive} + \underbrace{W(x,y)}_{fructuation}$$

$$E[G(x,y)] = E[a(x,y)]$$

Les conditions de non Bias s'écrive donc :

$$\sum_{i=1}^{N} \lambda_i(x,y) a(x_i,y_i) = a(x,y)$$

On doit faire à présent une hypothèse sur la variable $a(x,y)$ selon la nature du phénomène étudié.Dans notre cas le phénomène est approximativement constant à quelques fluctuations aléatoires près.[6] Nous en déduisons du fait de la constance de $a(x,y)$

$$\sum_{i=1}^{N} \lambda_i(x,y) = 1$$

L'hypothèse intrinsèque permet de corréler des points dans l'espace. Ainsi
$E[G(x_x,y_x), G(x_y,y_y)]$ qui représente la covariance à une constante près d'après l'hypothèse fondamentale, dépend de la distance entre les points de l'espace $P_x(x_x,y_x)$ et $P_y(x_y,y_y)$. La notion de distance sera euclidienne.

$$E[G(x_x,y_x), G(x_y,y_y)] = K\left(\sqrt{(x_x-x_y)^2 + (y_x-y_y)^2}\right)$$

K est appelé covariance généralisée et sera de type cubique dans notre cas, ce qui rend notre système équivalent au modèle d'Hermite utilisé en CAO pour lisser les courbes et surfaces. En utilisant le principe de minimisation de Lagrange, nous aboutissons à une équation de type matricielle à résoudre.

6. Il faut noter qu'un mauvais choix de la dérive ne nuit pas à l'interpolation, car la composante de fluctuation s'adaptera

$h_{ij} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2}$

$$\mathcal{M} = \begin{bmatrix} K(h_{11}) & 0 & \cdots & 0 & 1 & x_1 & y_1 \\ K(h_{21}) & K(h_{22}) & \cdots & 0 & 1 & x_2 & y_2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & K(h_{NN}) & 1 & x_N & y_N \\ 1 & 1 & \cdots & 1 & 0 & 0 & 0 \\ x_1 & x_2 & \cdots & x_N & 0 & 0 & 0 \\ y_1 & y_2 & \cdots & y_N & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \\ \vdots \\ b_N \\ a_0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} G_1 \\ G_2 \\ \vdots \\ G_N \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

$G_i = G(x_i, y_i)$ sont les points de mesure.
L'estimation $G(x, y)$ s'écriera donc :

$$G(x, y) = a_0 + \sum_{i=1}^{N} b_i K\left(\sqrt{(x - x_i)^2 + (y - y_i)^2}\right)$$

on rappel que $K(h) = h^3$
$G(x, y)$ représente donc la propriété mesurée localement dans tout l'espace.
Le logiciel Matlab a été utilisé et chaque point de mesure a été identifié selon les coordonnées (x_i, y_i) d'un système d'axes orthogonal centré au milieu de la plaque.

Annexe 2 : Résolution numérique des équations de porosités

Deux types d'équations ont été abordés : l'une thermomécanique et l'autre thermodiffusive

∗ **Équation thermomécanique**

$$\frac{\dot{R}_p}{R_p(t)} = \frac{P_0 \frac{T(t)}{T_0} \left[\frac{R_{p0}}{R_p(t)}\right]^3 - P_{imp}(t)}{\eta(T,\alpha)} - \frac{\gamma_{LV}}{2\eta(T,\alpha)R_p(t)}$$

comme le conseil Ledru[79] un dimensionnement s'avère nécessaire.
$\overline{R}_p = \frac{R_p}{R_{P0}}$ $\tau = \frac{t}{t_{cure}}$ $\theta(t) = \frac{T(t)}{T_0}$ $\pi(t) = \frac{P(t)}{P_0}$

$$\frac{d\overline{R}_p}{d\tau} = \frac{t_{cure}P_0\theta(t)}{4\eta(T,\alpha)\overline{R}_p^2} - \frac{t_{cure}P_0\pi(t)\overline{R}_p}{4\eta(T,\alpha)} - \frac{\gamma_{LV}t_{cure}}{2R_0\eta(T,\alpha)}$$

$$\frac{\overline{R}_p^2 d\overline{R}_p}{d\tau} = \frac{t_{cure}P_0\theta(t)}{4\eta(T,\alpha)} - \frac{t_{cure}P_0\pi(t)\overline{R}_p^3}{4\eta(T,\alpha)} - \frac{\overline{R}_p^2\gamma_{LV}t_{cure}}{2R_0\eta(T,\alpha)}$$

en posant le schéma implicite avec un pas de temps h :

$$\frac{d\overline{R}_p}{d\tau} = \frac{\overline{R}_p^{n+1} - \overline{R}_p^n}{h}$$
$$\overline{R}_p = \overline{R}_p^{n+1}$$

On obtient un polynôme de degré 3 en $\overline{R}_p^{n+1}$ que l'on peut résoudre de manière récursive avec des algorithmes Matlab Il s'agit d'une équation non linéaire : nous avons utilisé une discrétisation implicite d'Euler.

∗ **Équation thermodiffusive** Aucune difficulté de simulation, tous les paramètres sont pris du modèle de Kardos voir chapitre1 à l'exception des propriétés de la résine qui sont les nôtres.

Annexe 3 : Méthode de mapping de cuisson pour évaluer l'évolution du degré de cuisson suivant un cycle complexe

La méthode d'Iso-conversion par exemple d'un cycle standard avec deux dwells se fait de la sorte : trois tests sont nécessaires :

* Une dynamique avec un taux de chauffe β
* Une Isotherme 1 de valeur le premier dewll 1
* Une Isotherme 2 de valeur le second dewll 1

Ces tests ont, été réalisés par des travaux connexes que nous avons utilisés.
On part du cycle composé suivant :

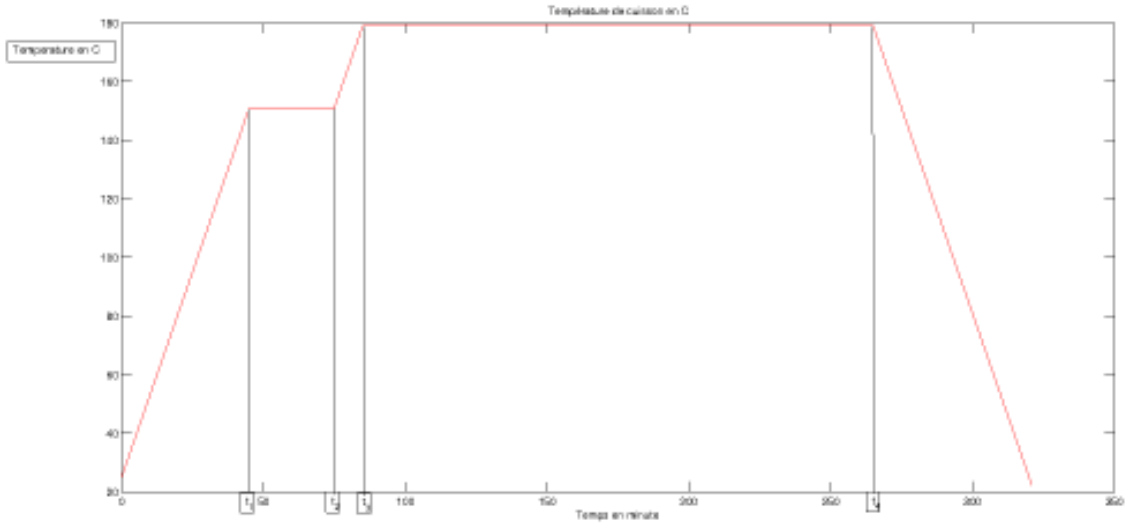


FIGURE A3.1 cycle de cuisson complexe

4 étapes nous permettent de faire un bon compromis pour tracer l'évolution du degré de cuisson

∗ Sur l'essai dynamique un tracé vertical sur le temps t_1 coupe la courbe en α_1

∗ Sur l'essai isotherme 1 on trace la ligne horizontale correspondant au degré de cuisson α_1 puis on lit le temps t_x associé à ce temps, on rajoute la durée du dwell 1 $d_1 = (t_2 - t_1)$ et le tracé vertical du temps $t_x + d_1$ coupe la courbe de cuisson en α_2.

∗ Sur l'essai dynamique, on trace la ligne horizontale correspondant au degré de cuisson α_2 puis on lit le temps t_x associé, à ce temps on rajoute la durée de la monté dynamique $d_2 = (t_3 - t_2)$ et le tracé vertical du temps $t_x + d_2$ coupe la courbe de cuisson en α_3.

∗ Sur l'essai isotherme 2 on trace la ligne horizontale correspondant au degré de cuisson α_3 puis on lit le temps t_x associé à ce temps, on rajoute la durée de la monté dynamique $d_3 = (t_4 - t_3)$ et le tracé vertical du temps $t_x + d_3$ coupe la courbe de cuisson en α_4.

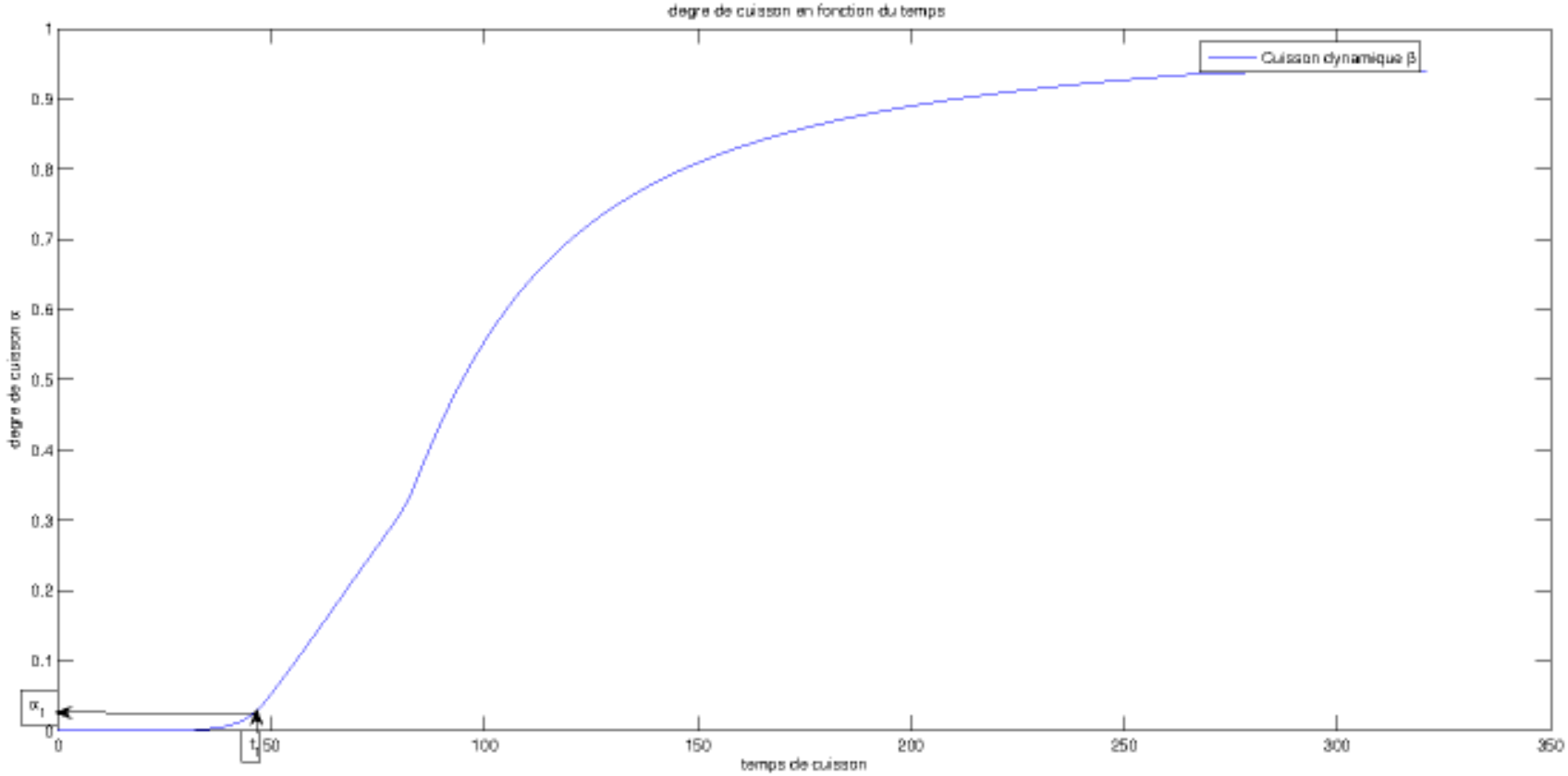


FIGURE A3.2 cycle complexe : Étape 1 mapping

F

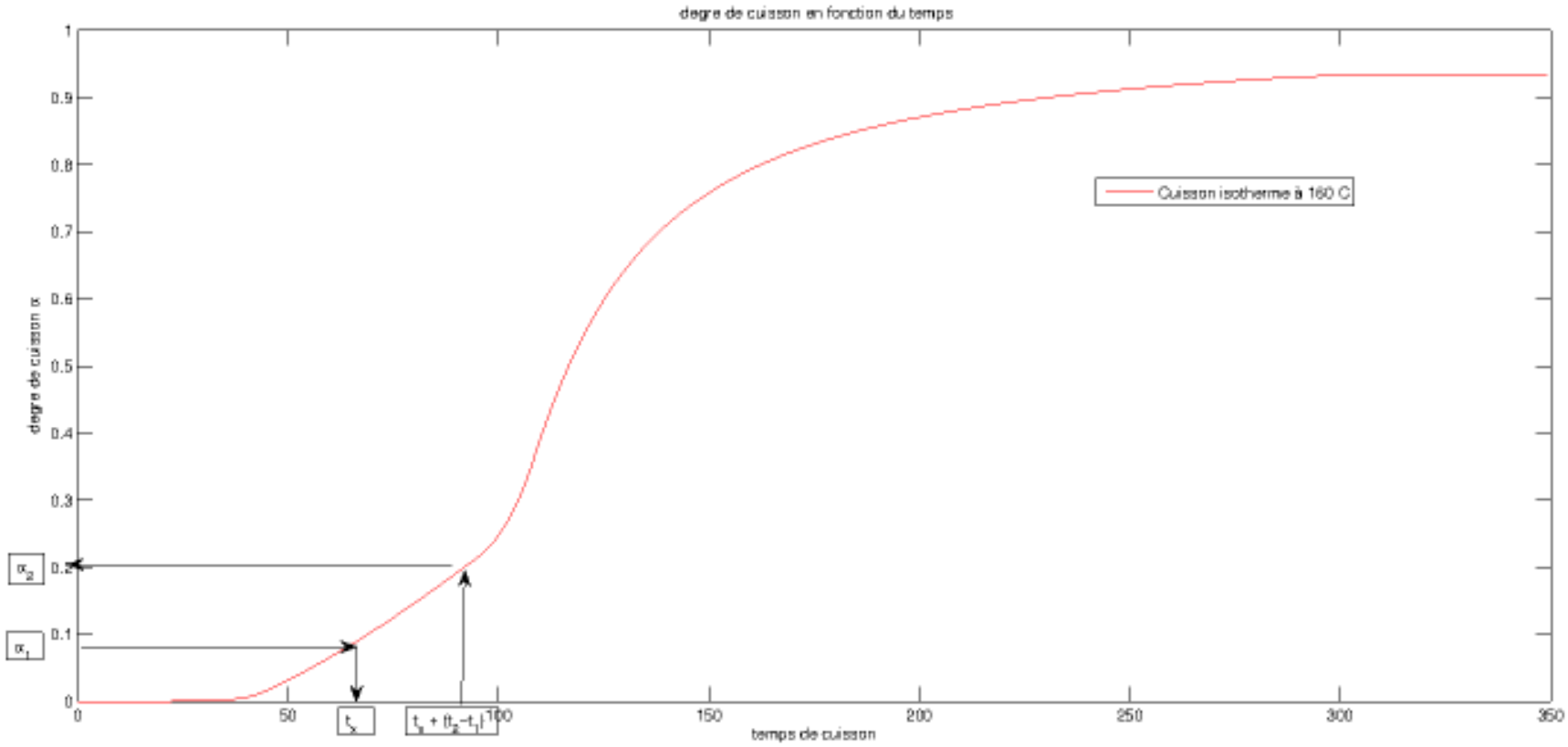


FIGURE A3.3 cycle complexe : Étape 2 mapping

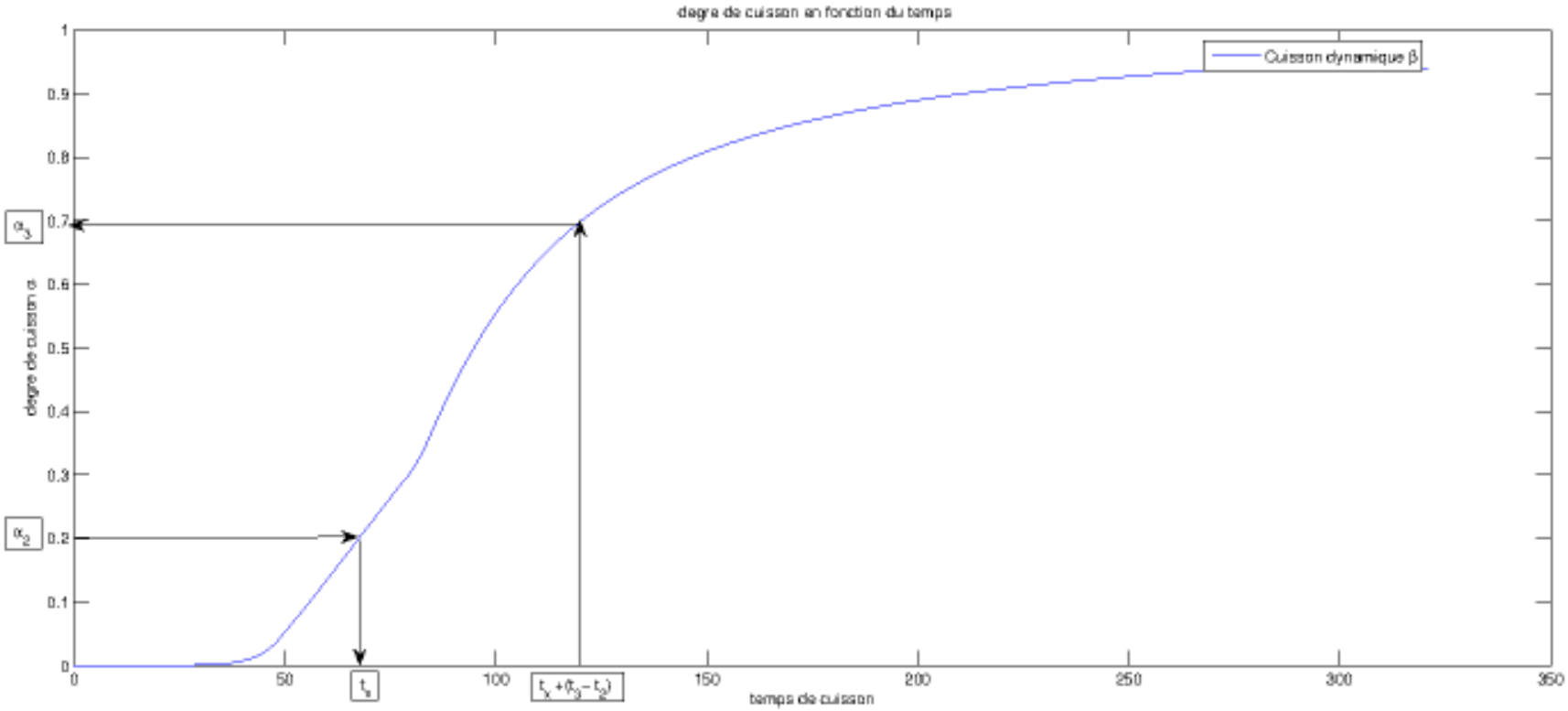


FIGURE A3.4 cycle complexe : Étape 3 mapping

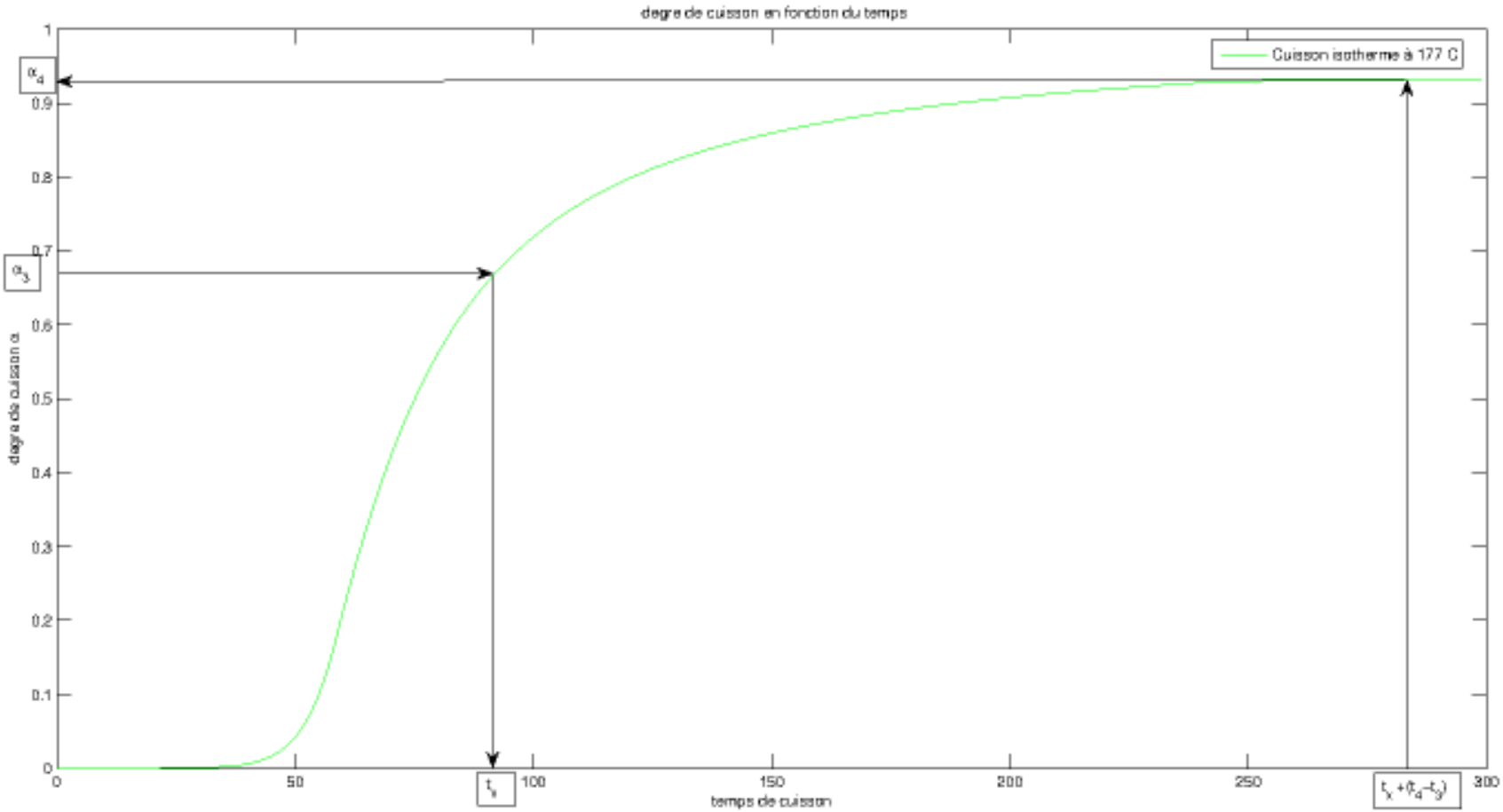


FIGURE A3.5 cycle complexe : Étape 4 mapping